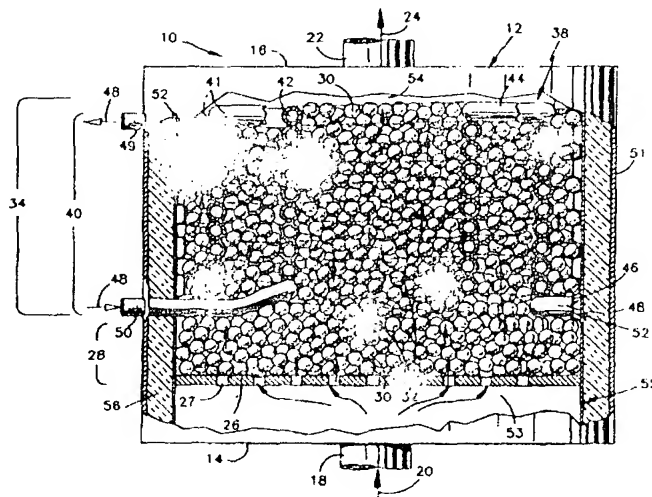




## INTERNATIONAL APPLICATION PUBLISHED UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

<b>(51) International Patent Classification <sup>6</sup>:</b> <b>B01J 8/02, C01B 3/12</b>	<b>A1</b>	<b>(11) International Publication Number:</b> <b>WO 97/44123</b> <b>(43) International Publication Date:</b> 27 November 1997 (27.11.97)
<b>(21) International Application Number:</b> PCT/US97/08334 <b>(22) International Filing Date:</b> 16 May 1997 (16.05.97) <b>(30) Priority Data:</b> 651,160      17 May 1996 (17.05.96)      US <b>(71) Applicant:</b> INTERNATIONAL FUEL CELLS CORPORATION [US/US]; 195 Governor's Highway, South Windsor, CT 06074 (US). <b>(72) Inventors:</b> SEDERQUIST, Richard, A.; 61 Sunset Road, Newington, CT 06111 (US). SZYDLOWSKI, Donald, F.; 9 Riverview Drive, Ellington, CT 06029 (US). CORRIGAN, Thomas, J.; 188 Rainbow Trail, Vernon, CT 06074 (US). BLAKE, Daniel, W.; 24 Valley View Drive, Glastonbury, CT 06033 (US). <b>(74) Agent:</b> KELLY, Robert, H.; United Technologies Corporation, Hamilton Standard, Patent Dept. MS 1-2-AB24, One Hamilton Road, Windsor Locks, CT 06096 (US).		<b>(81) Designated States:</b> CA, JP, European patent (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). <b>Published</b> <i>With international search report.</i>

**(54) Title:** SHIFT CONVERTER**(57) Abstract**

A fuel cell power plant, generally, has a fuel cell stack for electrochemically converting a hydrocarbon fuel into electricity. In order for the hydrocarbon fuel to be used by the fuel cell stack, it must be steam reformed into a hydrogen-rich process gas. This process gas has a carbon monoxide level that would be detrimental to the fuel cell stack, so the process gas is passed through a shift converter to decrease the carbon monoxide level therein prior to feeding the process gas to the fuel cell stack. In order to decrease the level of carbon monoxide without the need to increase the size of the shift converter catalyst bed, or lower the temperature of the process gas as it enters the shift converter to an undesirably low temperature, the shift converter design utilizes an upstream adiabatic zone and a downstream actively cooled zone. The actively cooled zone is cooled by a pressurized water coolant which boils as it cools the process gas stream. The coolant entering the shift converter is essentially a single phase water-stream, and the coolant exiting the shift converter is a two phase water-stream mixture.

**FOR THE PURPOSES OF INFORMATION ONLY**

Codes used to identify States party to the PCT on the front pages of pamphlets publishing international applications under the PCT.

AL	Albania	ES	Spain	LS	Lesotho	SI	Slovenia
AM	Armenia	FI	Finland	LT	Lithuania	SK	Slovakia
AT	Austria	FR	France	LU	Luxembourg	SN	Senegal
AU	Australia	GA	Gabon	LV	Latvia	SZ	Swaziland
AZ	Azerbaijan	GB	United Kingdom	MC	Monaco	TD	Chad
BA	Bosnia and Herzegovina	GE	Georgia	MD	Republic of Moldova	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagascar	TJ	Tajikistan
BE	Belgium	GN	Guinea	MK	The former Yugoslav Republic of Macedonia	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Greece	ML	Mali	TR	Turkey
BG	Bulgaria	HU	Hungary	MN	Mongolia	TT	Trinidad and Tobago
BJ	Benin	IE	Ireland	MR	Mauritania	UA	Ukraine
BR	Brazil	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Iceland	MX	Mexico	US	United States of America
CA	Canada	IT	Italy	NE	Niger	UZ	Uzbekistan
CF	Central African Republic	JP	Japan	NL	Netherlands	VN	Viet Nam
CG	Congo	KE	Kenya	NO	Norway	YU	Yugoslavia
CH	Switzerland	KG	Kyrgyzstan	NZ	New Zealand	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Democratic People's Republic of Korea	PL	Poland		
CM	Cameroon	KR	Republic of Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kazakhstan	RO	Romania		
CU	Cuba	LC	Saint Lucia	RU	Russian Federation		
CZ	Czech Republic	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Germany	LK	Sri Lanka	SE	Sweden		
DK	Denmark	LR	Liberia	SG	Singapore		
EE	Estonia						

## Description

### Shift Converter

#### Technical Field

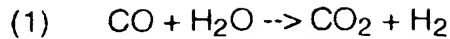
The present invention relates to hydrocarbon fuel processing, and more particularly to an improved shift converter which employs a two stage or two zone process gas treatment catalyst bed or beds.

#### Background Art

Fuel cell power plants which utilize a fuel cell stack for producing electricity from a hydrocarbon fuel are well known in the art. Each cell in the fuel cell stack includes an anode, a cathode, and an electrolyte disposed there between. Both the anode and the cathode utilize various well known catalysts. In order for the hydrocarbon fuel to be useful in the fuel cell stack's operation, it must first be converted to a hydrogen-rich stream. Hydrocarbon fuels which are used by the fuel cell stack pass through a steam reforming process to create a process gas having an increased hydrogen content which is introduced into the fuel cell stack. The resultant process gas contains hydrogen, carbon dioxide, and carbon monoxide. The process gas has about 10% carbon monoxide (on a dry basis) upon exit from the steam reformer.

Since the anode catalyst of a phosphoric acid fuel cell stack can be poisoned by a high level of carbon monoxide, the level of carbon monoxide in the process gas must be reduced prior to flowing the process gas to the fuel cell stack. This is conventionally done by passing the process gas through a low temperature shift converter prior to flowing the process gas to the fuel cell stack. The shift converter also increases the yield of hydrogen in the process gas.

Shift converters for reducing the carbon monoxide content of process gas are conventional, and typically comprise a chamber having an inlet, a catalyst bed consisting of copper/zinc oxide pellets, a perforated plate or screen to support the catalyst and a gas outlet downstream of the bed. In operation, a low temperature shift converter carries out an exothermic shift conversion reaction represented by the following equation:



The reaction (1) between the carbon monoxide and water concurrently reduces the carbon monoxide content and increases the carbon dioxide and hydrogen content of the process gas. The generation of additional hydrogen from this reaction is an advantage to the power plant since hydrogen is consumed at the fuel cell anode to produce power. Since the shift conversion reaction is exothermic, the heat of reaction increases the temperature of the process gas as it passes through the catalyst bed. The shift conversion reaction should take place within a suitable temperature range, preferably between 275°F and 550°F, so that the shift conversion catalyst bed is most efficient. If the catalyst bed temperature is too low, the reaction proceeds too slowly. If the temperature is too high, the catalyst can be damaged by thermal sintering. Excessively high temperatures also limit the equilibrium conversion resulting in too high an exit carbon monoxide level. In order for the shift conversion reaction to take place within the aforesaid desired temperature range, the shift conversion catalyst bed must be maintained at proper temperatures.

In the prior art, there are actively-cooled and adiabatic shift converters. The former has a means for actively cooling the shift converter while the latter does not. Both types of shift converters must be designed to meet two major operating parameters, which are reducing the carbon monoxide to a minimum level within the effluent and creating an effluent gas having an outlet temperature below the critical temperature, the critical temperature being the exit temperature above which damage to the fuel cell may occur. This effluent or exit temperature is typically about 425°F. Exit temperatures above this level may require an additional process heat exchanger to cool the process gas before entering the fuel cell. It is also desirable to operate the exit end of the shift converter at or near this critical temperature level as this will insure a low carbon monoxide content. Below this temperature level, the reaction rate is slower requiring additional catalyst volume to achieve the same level of carbon monoxide in the effluent.

Desirably, the shift converter should produce an effluent gas stream having a

carbon monoxide level of less than 1%. The carbon monoxide levels in the effluent of the actively-cooled, low temperature shift converters are about 0.2% to 0.3%, while they are about 0.3% to 0.5% in the effluent of the adiabatic low temperature shift converters, both of which are acceptable. The selection of an adiabatic or actively-cooled bed may not result in the most efficient use of catalyst resulting in the smallest required catalyst volume. With the adiabatic bed, the inlet temperature must be low enough to prevent the exit temperature from exceeding the critical outlet temperature. The low average temperature in the bed results in low catalyst activity, low reaction rates and the largest required catalyst volume. Higher levels of carbon monoxide in the inlet process gas require a very low inlet temperature which may be too low to initiate and achieve a sufficient reaction rate.

An actively-cooled bed allows for higher process inlet temperatures, higher average bed temperatures and reaction rates, and active cooling maintains an exit temperature for the gas at or below the critical outlet temperature. The required catalyst volume with an actively-cooled system at the same exit temperature and the same exit carbon monoxide levels as the adiabatic bed are smaller than the required catalyst volume for a purely adiabatic bed.

U.S. Patent No. 3,825,501 granted July 23, 1974 to J. R. Muenger discloses a multi-stage shift converter which includes an initial adiabatic portion followed by an actively-cooled isothermal portion, which in turn is followed by an equilibrium-limited actively cooled portion. The coolant in the actively isothermal portion reaches the temperature of the effluent gas stream from the adiabatic portion so as to hold the temperature of the gas stream steady through the isothermal portion. Thus the temperature of the coolant must rise to the temperature of the gas stream in the isothermal portion of the shift converter. The coolant, if a liquid, must be at a very high pressure in order that its temperature can increase; or the coolant may be steam which can operate at lower pressures than a water coolant. The coolant in the equilibrium-limited actively cooled portion is process gas. The process gas coolant will have its temperature rise in the equilibrium-limited portion of the shift converter so that the process gas will be preheated before the process gas enters the adiabatic portion of the shift converter. The use of a coolant which heats up as it cools the process gas requires a large volume coolant loop and may require very high pressures if a liquid coolant is employed.

U.S. Patent No. 5,464,606 granted November 7, 1995 to R. F. Buswell et al also discloses a shift converter which has an adiabatic portion and an actively cooled portion. The coolant in the actively cooled portion is process gas. The coolant stream process gas is heated as it cools the gas flowing through the catalyst bed.

It would be desirable to have a two stage shift converter which utilizes a coolant in the actively cooled stage which coolant does not substantially increase in temperature in the actively cooled portion of the shift converter. Such a system would allow for a more compact shift converter and one that would not require excessively high coolant pressures.

#### Disclosure of the Invention

A carbon monoxide shift converter formed in accordance with this invention includes a first catalytic bed or zone for causing carbon monoxide to convert to carbon dioxide and hydrogen adiabatically; and a second bed or zone downstream from the first catalytic bed or zone which has its temperature controlled by an active cooling pressurized water coolant. Heated process gas is directed into a shift converter having a catalytic bed. The catalytic bed has two zones, or separate beds, in series through which the process gas flows. The temperature of the first zone is controlled adiabatically and the temperature of the second zone, positioned downstream from the first zone, is actively controlled by a pressurized stream of water.

It is therefore an object of this invention to provide a compact and efficient shift converter which results in an effluent process gas stream having desirable carbon monoxide levels at desirable gas stream temperatures.

It is a further object of this invention to provide a shift converter of the character described wherein the actively cooled zone in the shift converter is preferably cooled by a pressurized water coolant which cools the process gas stream by boiling so that the temperature of the coolant is not significantly increased in the actively cooled zone of the shift converter. Alternatively, but at the expense of increased pumping power, the pressurized water coolant flow rate may be increased to a high enough rate so as to minimize its temperature rise thereby

preventing boiling, or minimizing the amount of boiling which occurs.

These and other objects of the invention will become more readily apparent from the following detailed description of a preferred embodiment thereof when considered in conjunction with the accompanying drawings, in which:

#### Brief Description of the Drawings

FIG. 1 is a cross sectional view of an embodiment of a shift converter formed in accordance with this invention; and

FIG. 2 is a graph plotting operating temperature ranges versus the length of shift converter catalyst beds; and comparing differences between a shift converter utilizing the present invention and prior art shift converters.

#### Best Mode for Carrying Out the Invention

FIG. 1 is a partially broken-away cross sectional view of one embodiment of a shift converter assembly formed in accordance with the present invention. The shift converter assembly, is denoted generally by the numeral 10, and includes a housing having a cylindrical catalyst chamber 12 containing a catalyst bed 30 for causing the desired shift from carbon monoxide to carbon dioxide and hydrogen as set forth in the formula (1). In the shift converter assembly 10, the process gas flows from an upstream end 14 to a downstream end 16 of the catalyst chamber 12 via an inlet 18 and an outlet 22 for the inlet process gas stream 20 and the outlet, or effluent, process gas stream 24, respectively.

As noted above, the housing contains a catalyst bed 30. The catalyst bed 30 is formed of conventional catalytic materials well known to those skilled in this art. Examples of catalysts which may be used include copper and zinc oxide, or copper, zinc oxide and alumina. The catalyst is positioned inside the housing substantially filling the housing. An upstream plenum 53 is formed in the end 14 of the catalyst chamber 12 in order to permit the incoming process gas to be substantially evenly distributed throughout the catalyst bed 30. The catalyst bed 30 is supported on a porous support plate 26 having perforations 27 which support plate 26 is spaced apart from the upstream end 14 of the catalyst chamber 12. A space is left between the top of the catalyst bed and the bottom of the downstream end 16 of the catalyst

chamber 12 to form a downstream plenum 54 for the processed effluent gas stream 24 exiting the converter assembly 10 via outlet 22.

A downstream zone 34 of the catalyst bed 30 contains an active cooling mechanism to actively control the temperature of the bed and the process gas. The active cooling mechanism is preferentially a heat exchange device which uses a liquid cooling fluid (preferably pressurized water) passing through coolant coils and plate coils. The preferred cooling assembly is a heat exchange device 38 having a plurality of cooling coils 40 disposed throughout the actively cooled zone 34 of the shift converter catalyst chamber bed 30. The cooling coils comprise an exterior loop 41 and an interior loop 42. More than two cooling coils may be included in the actively cooled zone 34 should operating conditions so require.

A plate coil 52 is also positioned on the wall of the catalyst chamber 12 and is in fluid communication with the cooling coils 41. The plate coil 52 is preferably an embossed plate welded to a cylindrical chamber wall 55 so as to form a series of horizontal and vertical channels 52 (vertical channels not shown) for conducting the cooling fluid around the periphery of the actively cooled catalytic bed zone 34. The inner set of cooling coils 42 is in fluid communication with the outer set of cooling coils 41 through the pipe 44. The outer set of cooling coils 41 is in fluid communication with outer cylindrical plate coil 52 through pipe 46. Preferably, the pressurized cooling liquid stream 48 enters the inner cooling coil 42 via pipe 50 and passes through the inner cooling coils 42 to the outer cooling coils 41 through pipe 44. After passing through the outer cooling coils 41, the cooling liquid then passes into the outer plate coils 52 through pipe 46. The cooling liquid 48 exits the outer plate coil 52 via pipe 49. In the adiabatic zone 28, a cylindrical chamber wall 55 forms the catalyst chamber 12. A layer of thermal insulation 56 may cover the cylindrical chamber wall 55, and an outer protective cylindrical housing 51 may cover the insulation layer 56. The temperature in the adiabatic zone 28 is not actively controlled but is a function of the exothermic catalytic reaction taking place in the bed 30 and is also a function of the inlet temperature of the gas. The chamber, including the plate coil 52 is preferably made of conventional materials such as carbon steel or stainless steel. The preferred material is carbon steel because of cost. The perforated catalyst support plate can be any metal structure, such as perforated metal plate or a suitable grid or heavy screen. The coolant is



preferably pressurized water which enters the inlet pipe 50 as a single phase coolant. The coolant water is preferably at a temperature that is about 25° below its boiling point at the coolant pressure, and it exits the pipe 49 as a two phase water-steam mixture. The steam content of the coolant in the pipe 49 is about 20% or less. Cooling of the process gas stream is the result of energy expended in boiling the coolant water in the coolant loops 41, 42 and 52. The temperature of the pressurized coolant water, once it reaches its boiling point, does not increase during the cooling operation.

In operation, a steam reformer (not shown) produces a hydrogen-rich process gas containing hydrogen, carbon dioxide, carbon monoxide, water vapor and unreacted methane. The process gas 20 enters the inlet 18 at a temperature of between about 350°F and 450°F, with about 400°F being preferred. The process gas flows into the plenum 53 and through the holes 27 in the porous support plate 26, and enters the adiabatic zone 28 contacting the catalyst 30 therein. Throughout the adiabatic zone 28, the shift conversion reaction (1) of carbon monoxide and water occurs producing carbon dioxide and additional hydrogen.

As the process gas 20 passes through the adiabatic zone 28 contacting the catalyst 30, the shift conversion reaction progresses, the temperature of the process gas increases due to the exothermic heat of reaction so as to produce a high temperature effluent 32. The temperature of the high temperature effluent 32 is between about 450°F and 550°F, with about 500°F being preferred. As the high temperature effluent 32 flows through the actively-cooled zone 34, its temperature is controlled by boiling the pressurized water 48 in the heat exchange device 38. The heat exchange water is preferably derived from the fuel cell cooling loop and has a temperature of about 300°F to about 350°F, and a pressure in the range of about 100-250 psi, with 150 psi being about the preferred pressure. Alternatively a dielectric fluid at the appropriate temperature and an appropriate pressure could be used. The coolant water 48 removes heat from the high temperature effluent 32 by boiling so as to create a low temperature (375°F to 400°F), low carbon monoxide content (less than 1%) effluent 24 which exits the shift converter through the outlet 22.

The length or volume of the adiabatic zone 28 determines the percent of carbon monoxide in the high temperature effluent 32 that crosses into the actively cooled zone 34. In an embodiment with an inlet process gas having a carbon monoxide content of about 9% to 12% by volume on a dry basis, the amount of carbon monoxide in the high temperature effluent is desirably between about 1.5% to 4.5%, on a dry basis, with a typical content of about 3%. The appropriate percent of carbon monoxide ensures that sufficient conversion has occurred in the adiabatic zone 28, so that the actively cooled zone 34 need merely convert a small additional amount of carbon monoxide in the high temperature effluent 32. A portion of the carbon monoxide remaining in the high temperature effluent 32 is converted to carbon dioxide with the aid of the actively cooled zone 34 utilizing the shift conversion reaction (1).

FIG. 2 is a graphic representation of analytical heat transfer and kinetic approximations illustrating how a shift converter consisting of an adiabatic zone followed by a pressurized water-cooled zone requires less total shift catalyst volume or length than either a solely adiabatic or a solely actively cooled shift converter to achieve the same resultant carbon monoxide concentration in a process gas. Curve A represents the process gas or bed temperature profile throughout the bed for a solely adiabatic shift converter. Curve B represents the temperature profile for a solely actively cooled shift converter. Curve C represents the temperature profile for a shift converter formed in accordance with this invention, i.e., an adiabatic shift converter zone followed by an actively cooled shift converter zone. It is assumed for this computation that the process gas entering each shift converter has the same inlet carbon monoxide concentration, and that each shift converters A, B, and C all have the same exit or outlet carbon monoxide concentration, and the same exit or outlet temperature which is controlled so as not to exceed the critical outlet process gas temperature, above which damage may occur to the fuel cell. The required length of each shift converter to achieve the desired conversion and outlet temperature is shown as  $L_A$  (adiabatic),  $L_C$  (actively cooled) and  $L_{AC}$  (combined adiabatic-actively cooled).

Four constant temperature lines are also plotted on FIG. 2. The lowest line D is the minimum practical shift catalyst operating temperature plotted here as a nominal 275°F, below which the catalyst activity or reaction rates are insufficient to initiate

the shift conversion process. The next line E is a typical coolant temperature, set here as 350°F. The next higher line F is the critical outlet temperature, set here as a nominal 425°F. The highest line G is the maximum recommended catalyst operating temperature, above which thermal sintering will reduce catalyst activity over a period of time. This is plotted at a nominal temperature of 550°F. The bed temperature profile of the adiabatic shift converter, curve A, is the lowest of the three curves A, B and C shown in FIG. 2. The lowest bed temperature also results in the lowest catalyst activity and lowest reaction rate and therefore the largest required catalyst volume to achieve the desired carbon monoxide conversion as shown by the highest relative catalyst bed length. This length is designated as  $L_A$ . An actively-cooled shift converter temperature profile, curve B, shows that the process gas inlet temperature can be set at a higher temperature shown here at 400°F. The higher average catalyst bed temperature results in increased catalyst activity, which increases the reaction rate. Thus a shorter catalyst bed length is possible, as compared to the adiabatic shift converter, curve A. This length is designated as  $L_C$  which is shorter than  $L_A$ .

A combined adiabatic and pressurized water cooled shift converter, curve C, achieves the highest possible reaction rates by operating at the highest temperature and defers the least amount of exothermic reaction to the latter part of the actively-cooled shift converter. This allows more rapid cooling at the exit of the bed and overall the shortest length of the three shift converters. This length is designated as  $L_{AC}$  which is shorter than either  $L_A$  and  $L_C$ . In the adiabatic portion of curve C, the temperature of the process gas increases from a preferred inlet temperature of about 400°F to about 500°F which is below the maximum practical operating temperature of 550°F of the adiabatic portion of the shift converter. The carbon monoxide concentration in the process gas is rapidly reduced to about 3% in the adiabatic zone of the shift converter, leaving only a 3% carbon monoxide content to be converted to carbon dioxide in the actively-cooled portion.

It will be understood that although the present invention has been described in a specific embodiment, various modifications of the specific embodiment of the invention may be made without departing from the inventive concept. Therefore, it is

not intended to limit the invention otherwise than as required by the appended claims.

What is claimed is:

## Claims

1. A shift converter for reducing the amount of carbon monoxide in a process gas, said shift converter having a chamber, said chamber having an inlet for entry of the process gas into the chamber, and an outlet for exit of a low temperature effluent from the chamber, said outlet being disposed downstream of the inlet, said shift converter comprising:
  - a) an adiabatic catalytic reaction zone having shift converter catalyst disposed therein for exothermally converting a major portion of the carbon monoxide in the process gas into carbon dioxide and hydrogen, thereby producing a high temperature effluent; and
  - b) an actively-cooled catalytic reaction zone positioned downstream from said adiabatic catalytic reaction zone for cooling the high temperature effluent and for creating the low temperature effluent, said actively-cooled zone having a shift converter catalyst disposed therein for converting a minor portion of the carbon monoxide remaining within the high temperature effluent into carbon dioxide and hydrogen, and said actively cooled zone including heat exchange means utilizing a pressurized liquid coolant stream which enters the actively cooled zone as a single phase liquid coolant, and is converted in said actively cooled zone to a two phase liquid-gas coolant without a significant temperature increase due to boiling of said single phase liquid coolant in said actively cooled zone.
2. The shift converter of Claim 1 wherein said liquid coolant is water.
3. The shift converter of Claim 2 wherein said heat exchange means maintains said water coolant at a pressure in the range of about 100 psi to about 250 psi,
4. The shift converter of Claim 3 wherein said heat exchange means maintains said water coolant at a temperature in the range of about 300°F to about 350°F.
5. A method for lowering the percent of carbon monoxide in a process gas stream by means of an exothermic shift conversion reaction, said method comprising the steps of:

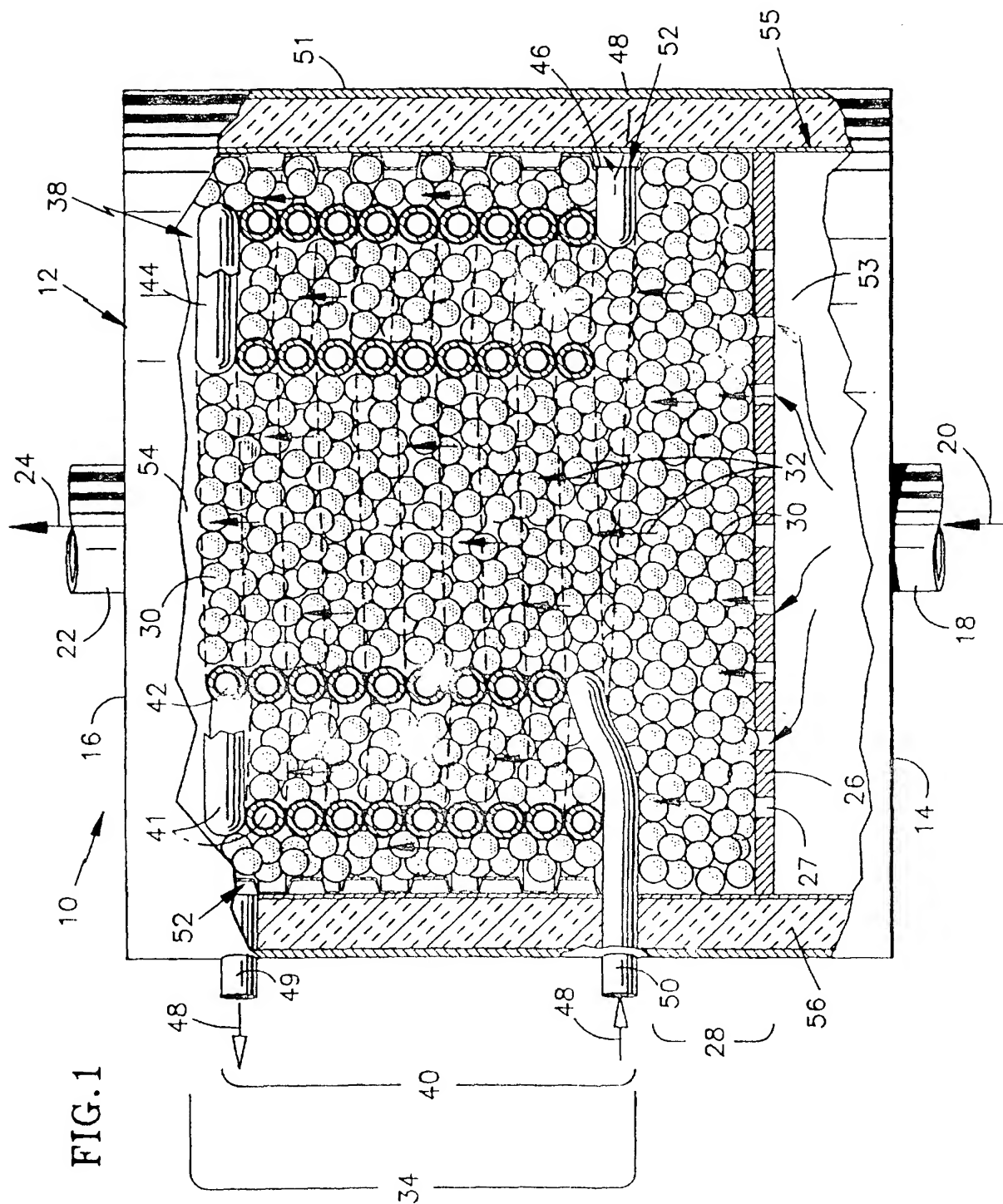
- a) providing a stream of process gas;
- b) passing said stream of process gas through an adiabatic shift converter to produce a high temperature effluent process gas stream; and
- c) passing said high temperature effluent process gas stream through an actively cooled shift converter which is cooled by a pressurized stream of water so as to produce a lower temperature effluent gas stream.

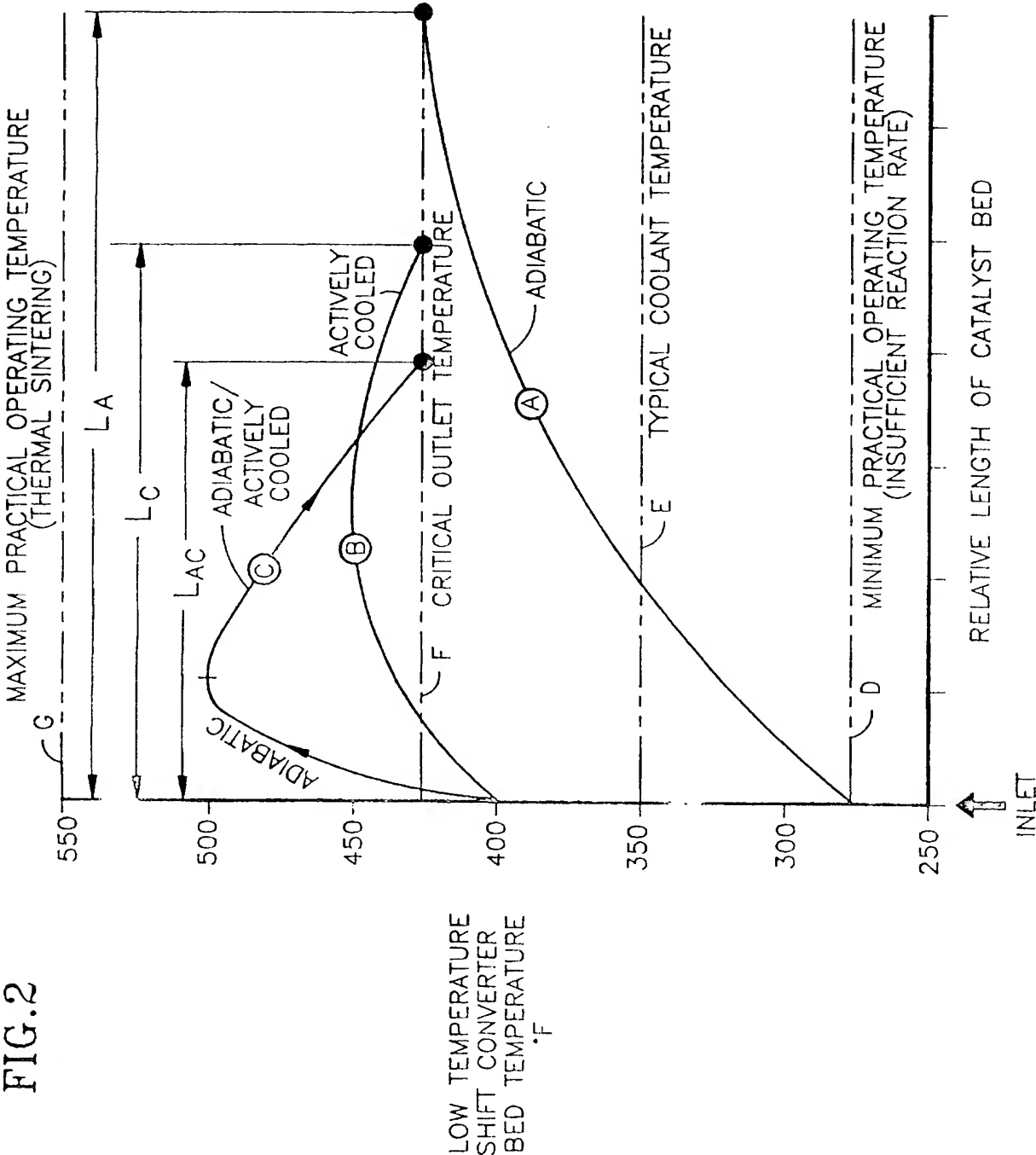
6. The method of Claim 5 wherein the step of cooling said high temperature effluent gas stream in said actively cooled shift converter by boiling said pressurized stream of water coolant.

7. The method of Claim 6 wherein said high temperature effluent gas stream is cooled from a temperature in the range of about 450°F to about 550°F to a temperature in the range of about 375°F to about 425°F by said pressurized stream of water coolant.

8. The method of Claim 7 wherein said lower temperature stream of process gas has a temperature in the range of about 350°F to about 450°F.

1/2







# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/US 97/08334

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
IPC 6 B01J8/02 C01B3/12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 6 B01J C01B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 3 825 501 A (MUENGER J) 23 July 1974 cited in the application see the whole document see figure 1 see column 4, line 16-72 ---	5
A	US 5 464 606 A (BUSWELL RICHARD F ET AL) 7 November 1995 cited in the application see the whole document see column 3, line 65 - column 4, line 11 see column 4, line 66 - column 5, line 1 ---	
A	US 4 476 683 A (SHAH RASIKLAL P ET AL) 16 October 1984 see the whole document see figure 1 see column 5, line 33 - column 6, line 20 ---	
-/--		

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents:

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- \*Z\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

3 September 1997

Date of mailing of the international search report

12.09.97

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+ 31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+ 31-70) 340-3016

Authorized officer

Dack, S

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/US 97/08334

## C. (Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>EP 0 213 840 A (ICI PLC) 11 March 1987  see the whole document  see column 2, line 1-24  -----</p>	

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/US 97/08334

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 3825501 A	23-07-74	US 3666682 A	30-05-72
US 5464606 A	07-11-95	CA 2149794 A	28-11-95
US 4476683 A	16-10-84	NONE	
EP 0213840 A	11-03-87	AU 584232 B	18-05-89
		AU 6172986 A	05-03-87
		CA 1249420 A	31-01-89
		DE 3682003 A	21-11-91
		IN 167736 A	15-12-90
		JP 7053562 B	07-06-95
		JP 62052103 A	06-03-87
		US 4721611 A	26-01-88



19 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENTAMT

12 Patentschrift  
10 DE 197 16 470 C 1

51 Int. Cl.<sup>6</sup>:  
H 01 M 8/04

21 Aktenzeichen: 197 16 470.6-45  
22 Anmeldetag: 19. 4. 97  
43 Offenlegungstag: -  
45 Veröffentlichungstag  
der Patenterteilung: 1. 10. 98

Innerhalb von 3 Monaten nach Veröffentlichung der Erteilung kann Einspruch erhoben werden

73 Patentinhaber:  
MTU Motoren- und Turbinen-Union  
Friedrichshafen GmbH, 88045 Friedrichshafen, DE

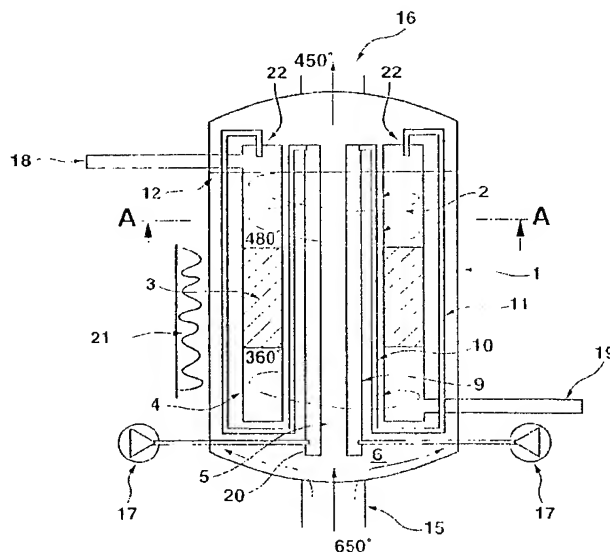
72 Erfinder:  
Huppmann, Gerhard, 83620  
Feldkirchen-Westerham, DE

56 Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht  
gezogene Druckschriften:

DE 44 25 186 C1  
EP 07 41 428 A1  
EP 06 54 838 A1  
EP 05 80 918 A1  
WO 96 20 506 A1

54 Integriertes Brennstoffaufbereitungsmodul für eine Brennstoffzellenanlage

57 Es wird ein integriertes Brennstoffaufbereitungsmodul zur Aufbereitung des den Brennstoffzellen einer Brennstoffzellenanlage zuzuführenden Brenngases beschrieben. Gemäß der Erfindung sind in einem gemeinsamen Gehäuse (1) eine Vorwärmungs- und Befeuchtungszone (2), eine Vorreformierungszone (3) und eine Brenngasaufheizungszone (4) vorgesehen. Weiterhin sind Mittel vorgesehen, um diese Zonen nacheinander mit dem Brenngas zu durchströmen. Gemäß vorteilhaften Ausführungsformen der Erfindung sind die Brennstoffaufbereitungs- zonen (2, 3, 4) in einem Kreisringzylinder (7) der Reihe nach von oben nach unten angeordnet und werden von dem Brenngas auf einer spiralförmigen Bahn durchlaufen. Die Erwärmung des Brenngases erfolgt vorteilhafter weise durch das im Gegenstrom über Strömungswege (5, 6) durch das gemeinsame Gehäuse zugeführte heiße Ab gas der Brennstoffzellenanlage.



DE 197 16 470 C 1

DE 197 16 470 C 1

## Beschreibung

Die Erfindung betrifft ein integriertes Brennstoffaufbereitungsmodul zur Aufbereitung des den Brennstoffzellen einer Brennstoffzellenanlage zuzuführenden Brenngases.

Für den Betrieb von Brennstoffzellen bedarf es einer besonderen Aufbereitung des den Brennstoffzellen zuzuführenden Brenngases. Diese Aufbereitung des Brenngases ist eine der wesentlichen Funktionen der Peripherie einer Brennstoffzellenanlage. Sie umfaßt die Schritte der Reinigung, Entschwefelung, Vorheizung, Befeuchtung, Vorreformierung des Brenngases und dessen Aufheizung auf die Eintrittstemperatur der Brennstoffzellen. Diese einzelnen Schritte werden bisher bei Brennstoffzellenanlagen in jeweils separat vorgesehenen Einrichtungen vorgenommen und erfordern einen vergleichsweise hohen Aufwand hinsichtlich der Verrohrung dieser Einrichtungen sowie eine aufwendige und damit kostspielige Regelung und gegenseitige Abstimmung der einzelnen Komponenten. Durch diese komplizierten anlagentechnischen Aufbau sind die Investitionskosten für die Brenngasaufbereitung sehr hoch und tragen einen wesentlichen Teil dazu bei, daß die Anlagenperipherie von Brennstoffzellenanlagen obwohl es sich um konventionelle Verfahrenstechnik handelt etwa zwei Drittel der Gesamtinvestition erreicht, während der eigentliche innovative Anteil der Brennstoffzelle nur ein Drittel beträgt.

Bei Brennstoffzellenanlagen mit Brennstoffzellen des Schmelzkarbonattyps (MCFC) sind Vorwärmung und Befeuchtung, Vorreformierung und Aufheizung des Brenngases auf die Brennstoffzelleneintrittstemperatur die wesentlichen Schritte der Aufbereitung des Brenngases.

Aus der DE 44 25 186 C1 geht die Anordnung eines Brennstoffzellenstapels in einem Schutzgehäuse als bekannt hervor, wobei verbrauchtes Kathoden- und Anodengas in das Innere des Schutzgehäuses ausströmt und zur Rückführung in Zirkulation versetzt wird. Im Inneren des Schutzgehäuses kann ferner ein Wärmetauscher angeordnet sein, der zur Auskoppelung von Nutzwärme aus dem zirkulierenden Kathodengas vorgesehen ist. Ferner kann eine katalytische Verbrennungseinheit im Gasstrom vorgesehen sein.

Wie in der EP 0741 428 A1 gezeigt, beinhaltet das Versorgungssystem für eine Brennstoffzellenanordnung, die zum Einsatz in Fahrzeugen vorgesehen ist, Kühl-, Heiz- und Befeuchtungseinrichtungen für die Aufbereitung der Gasströme. Die entsprechenden Anlagenteile sind so zusammengefaßt, daß sich möglichst kompakte, kleinbauende Komponenten ergeben.

Die EP 0 654 838 A1 betrifft Hochtemperaturbrennstoffzellen, die in einem zylindrischen Behälter mit einer mehrschichtigen Hülle angeordnet sind. In der Hülle sind Kanalsysteme für Luft, Brenngas und Abgas integriert. Ferner sind ein Nachverbrennungsraum und ein Prereformer enthalten. Die Kanalsysteme stehen jeweils in wärmeübertragender Verbindung miteinander.

In der EP 0 580 918 A1 ist ein zentralsymmetrischer Zellenstapel mit einer wärmedämmenden Hülle dargestellt. Die Hülle ist mehrschichtig ausgebildet und weist ein Kanalsystem für den Luftstrom auf. In einem äußeren Bereich erfolgt in einem ersten Hohlraum eine Kühlung der Hülle durch Luft. Das an den ersten Hohlraum anschließende Kanalsystem dient zur Erwärmung der Luft. Zwischen der zylindrischen Oberfläche des Zellenstapels und der Hülle befindet sich ein Nachverbrennungsraum.

Aus der WO 96/20506 A1 geht ein Brennstoffzellenmodul als bekannt hervor, bei dem der Zellenstapel, eine katalytische Verbrennungseinrichtung und ein Reformier in einem isolierenden Schutzgehäuse zusammengefaßt sind.

Die Aufgabe der Erfindung ist es, ein integriertes Brennstoffaufbereitungsmodul zur Aufbereitung des den Brennstoffzellen einer Brennstoffzellenanlage zuzuführenden Brenngases zu schaffen, welches einen geringen Aufwand hinsichtlich Aufbau und Regelung erfordert.

stoffaufbereitungsmodul zur Aufbereitung des den Brennstoffzellen einer Brennstoffzellenanlage zuzuführenden Brenngases zu schaffen, welches einen geringen Aufwand hinsichtlich Aufbau und Regelung erfordert.

5 Diese Aufgabe wird gemäß der vorliegenden Erfindung durch ein integriertes Brennstoffaufbereitungsmodul mit den im Anspruch 1 angegebenen Merkmalen gelöst.

Das integrierte Brennstoffaufbereitungsmodul zur Aufbereitung des den Brennstoffzellen einer Brennstoffzellenanlage zuzuführenden Brenngases enthält erfindungsgemäß eine Vorwärmungs- und Befeuchtungszone, eine Vorreformierungszone und eine Brenngasaufheizungszone, die in einem gemeinsamen Gehäuse angeordnet sind, sowie Mittel, um diese Zonen nacheinander mit dem Brenngas zu durchströmen.

Ein weiteres Merkmal der Erfindung besteht darin, daß die Vorwärmungs- und Befeuchtungszone mit Mitteln zur Zuführung von Dampf versehen ist.

Ein weiteres Merkmal der Erfindung besteht darin, daß die Vorreformierungszone ein Katalysatormaterial aufweist.

Ein weiteres Merkmal der Erfindung besteht darin, daß die Brenngasaufheizungszone mit einer Wärmetauschereinrichtung versehen ist.

Gemäß einer Weiterbildung der Erfindung ist es vorgesehen, daß die Vorwärmungs- und Befeuchtungszone, die Vorreformierungszone und Brenngasaufheizungszone in der genannten Reihenfolge von dem Brenngas durchströmt werden.

Gemäß einer anderen Weiterbildung der Erfindung ist es vorgesehen, daß das gemeinsame Gehäuse mit von einem Wärmetauschermedium durchströmbareren Strömungswegen versehen ist, die zur Übertragung von Wärme zumindest mit der Vorwärmungs- und Befeuchtungszone und der Brenngasaufheizungszone thermisch in Kontakt stehen.

Gemäß einer anderen Weiterbildung der Erfindung ist es vorgesehen, daß das Wärmetauschermedium im Gegenstrom zu dem Brenngasstrom durch das Brennstoffaufbereitungsmodul fließt.

Vorteilhafterweise ist das Wärmetauschermedium ein heißes Gas, insbesondere das heiße Abgas der Brennstoffzellenanlage.

Gemäß einer Weiterbildung der Erfindung ist es vorgesehen, daß die von dem Brenngas durchströmten Zonen in dem gemeinsamen Gehäuse übereinander angeordnet sind und von dem Brenngas von oben nach unten durchströmt werden, und daß das Heißgas im Gegenstrom dazu von unten nach oben durch das Brennstoffaufbereitungsmodul strömt.

Gemäß einer besonders vorteilhaften Weiterbildung der Erfindung ist es vorgesehen, daß die von dem Brenngas durchströmten Zonen in einem aufrecht stehenden Zylinder mit kreisringförmigem Querschnitt übereinander angeordnet sind, und daß die von dem Heißgas durchströmten Strömungswege im Inneren und um den Zylinder herum vorgesehen sind.

Bei einer anderen vorteilhaften Weiterbildung der Erfindung ist es vorgesehen, daß der Kreisringzylinder Mittel aufweist, durch die das Brenngas auf einer spiralförmigen Bahn durch diesen geführt wird.

Diese Mittel zum Führen des Brenngases sind vorteilhafterweise durch spiralförmige Gasleitbleche gebildet.

Gemäß einer Weiterbildung der Erfindung ist es vorgesehen, daß in den von dem als Heizmedium dienenden Wärmetauschermedium durchströmbareren Strömungswegen Finnen zum Erzeugen von der Vorwärmungs- und Befeuchtungszone zuzuführendem Dampf vorgesehen sind.

Diese Verdampfungseinrichtungen können durch in den Strömungswegen des Wärmetauschermediums angeordnete

Siederohre gebildet sein.

Vorteilhafterweise verfügen die Siederohre über jeweils im Inneren und um den Kreisringzylinder angeordnete Abschnitte, die von unten nach oben durchströmt werden.

Dies wird vorteilhafterweise dadurch weitergebildet, daß die Siederohre einen im Inneren des Kreisringzylinders aufsteigenden Abschnitt, einen im Inneren des Kreisringzylinders absteigenden Abschnitt und einen auf der Außenseite des Kreisringzylinders aufsteigenden Abschnitt aufweisen, wobei das obere Ende des auf der Außenseite aufsteigenden Abschnitts mit den Mitteln zur Zuführung von Dampf in die Vorwärmungs- und Befeuchtungszone verbunden ist.

Gemäß einer vorteilhaften Weiterbildung der Erfindung ist es vorgesehen, daß in dem den Kreisringzylinder umgebenden Strömungsweg für das Wärmetauschermedium Regelklappen zur Drosselung des Stroms des Wärmetauschermediums vorgesehen sind.

Vorteilhafterweise hat der den Kreisringzylinder umgebende Strömungsweg einen kreisringförmigen Querschnitt, und die Regelklappen sind durch Öffnungen in zwei übereinander angeordneten, gegeneinander verschiebbaren kreisringförmigen Elementen gebildet.

Gemäß einer vorteilhaften Ausführungsform ist es vorgesehen, daß das gemeinsame Gehäuse kreiszylinderförmig ist, und daß der Kreisringzylinder zentrisch in dem gemeinsamen Gehäuse angeordnet ist.

Gemäß einer Ausbildung der Erfindung hat das Brennstoffaufbereitungsmodul an der Unterseite einen Einlaß und an der Oberseite einen Auslaß für das Wärmetauschermedium.

Vorteilhafterweise ist das gemeinsame Gehäuse nach außen wärmeisoliert.

Im folgenden wird ein Ausführungsbeispiel der Erfindung anhand der Zeichnung erläutert.

Es zeigen:

**Fig. 1** eine schematisierte Darstellung eines Querschnitts durch ein integriertes Brennstoffaufbereitungsmodul gemäß einem Ausführungsbeispiel der Erfindung;

**Fig. 2** eine geschnittene Draufsicht auf das in **Fig. 1** gezeigte integrierte Brennstoffaufbereitungsmodul entlang der Linie A-A';

**Fig. 3** eine perspektivische Ansicht eines in dem integrierten Brennstoffaufbereitungsmodul gemäß dem dargestellten Ausführungsbeispiel verwendeten Kreisringzylinders, welcher einzelne Zonen zur Aufbereitung des Brennstoffs enthält; und

**Fig. 4** eine perspektivische fragmentarische Ansicht einer Regelklappenanordnung, wie sie bei dem dargestellten Ausführungsbeispiel zur Regelung des Stroms eines Wärmetauschermediums verwendet wird.

Wie aus den **Fig. 1, 2** und **3** zu sehen ist, ist in einem zylindrischen gemeinsamen Gehäuse **1** ein kreisringzylinderförmiges Element **7** angeordnet, welches das Hauptbestandteil des integrierten Brennstoffaufbereitungsmoduls bildet. Dieser Kreisringzylinder **7** verfügt in seinem oberen Bereich über eine Vorwärmungs- und Befeuchtungszone **2**, an die sich im mittleren Bereich eine Vorreformierungszone **3** und im unteren Bereich schließlich eine Brenngasaufheizungszone **4** anschließt. Das aufzubereitende Brenngas, welches in Einrichtungen, die in der Figur nicht dargestellt sind, bereits von Staub und Schwefelverbindungen gereinigt worden ist, tritt über einen Brenngaseinlaß **18** an der Oberseite in die Vorwärmungs- und Befeuchtungszone **2** ein. An der Unterseite der Brenngasaufheizungszone **4** befindet sich ein Brenngasauslaß **19**, über welchen das aufbereitete Brenngas das integrierte Brennstoffaufbereitungsmodul verläßt und den Brennstoffzellen der Brennstoffzellenanlage zugeführt wird. In dem Kreisringzylinder **7** sind spiralförmige Gasleit-

bleche **8** vorgesehen, welche besonders in **Fig. 3** dargestellt sind, und welche dazu dienen für das aufzubereitende Brenngas einen spiralförmigen Strömungsweg durch die einzelnen Zonen **2, 3, 4** zu bilden, welcher in dem Kreisringzylinder **7** von oben nach unten verläuft. An der Oberseite der Vorwärmungs- und Befeuchtungszone **2** befinden sich Dampfdufen **22**, welche als Mittel zur Zuführung von Dampf dienen, mit dessen Hilfe das Brenngas in der Vorwärmungs- und Befeuchtungszone **2** vorgewärmt und befeuchtet wird. Die sich anschließende Vorreformierungszone **3** ist mit einem Katalysatormaterial versehen, welches dazu dient höhere Kohlenwasserstoffe im Brenngas zu reformieren, die sonst in der Brennstoffzelle zur Rußbildung führen könnten. In der sich an der Vorreformierungszone **3** anschließenden Brenngasaufheizungszone **4** wird das Brenngas auf die erforderliche Eintrittstemperatur der Brennstoffzellen aufgeheizt.

Das Vorwärmen und Aufheizen des den Kreisringzylinder **7** durchströmenden Brenngases erfolgt durch Wärmetausch mit einem das gemeinsame Gehäuse von unten nach oben durchströmenden Wärmetauschermedium. Dieses Wärmetauschermedium ist das heiße Abgas der Brennstoffzellen der Brennstoffzellenanlage. Zum Eintritt des heißen Abgases ist an der Unterseite des gemeinsamen Gehäuses **1** ein Heißgaseinlaß **15** vorgesehen; an der Oberseite des Gehäuses **1** befindet sich ein Heißgasauslaß **16**. Der Strömungsweg des am Heißgaseinlaß **15** eintretenden Gases verzweigt sich in einen Strömungsweg **5**, welcher das Innere des Kreisringzylinders **7** durchläuft, und einen Strömungsweg **6**, welcher um das Äußere des Kreisringzylinders **7** herum verläuft. Die beiden Strömungswege **5** und **6** vereinigen sich an der Oberseite des gemeinsamen Gehäuses **1** wieder, um über den Auslaß **16** aus dem gemeinsamen Gehäuse **1** zu führen. Diese Strömungswege **5, 6** stehen zumindest mit der Vorwärmungs- und Befeuchtungszone **2** und der Brenngasaufheizungszone **4** des Kreisringzylinders **7** thermisch in Kontakt, so daß ein Wärmeübergang von dem den Kreisringzylinder **7** umströmenden Heißgas auf das in dem Kreisringzylinder **7** durch die einzelnen Zonen **2, 3, 4** strömende Brenngas ermöglicht wird.

Durch weiterhin im Inneren des gemeinsamen Gehäuses angeordnete Siederohre **9, 10, 11**, welche zusammen eine Verdampfereinrichtung **20** bilden, wird über Speisewasserpumpen **17** zugeführtes Speisewasser verdampft und in überhitzten Dampf verwandelt, welcher über die Dampfklappen **22** an der Oberseite in die Vorwärmungs- und Befeuchtungszone **2** geführt wird. Die Siederohre umfassen zunächst einen im Inneren des Kreisringzylinders **7** von unten nach oben führenden Hauptabschnitt in Form des Siederohrs **9**, in welchem das Speisewasser verdampft wird. Von der Oberseite des Rohrabschnitts führt mit Siederohr **10** ein Rohrabschnitt im Inneren des Kreisringzylinders **7** wieder nach unten und ist mit einem auf der Außenseite des Kreisringzylinders **7** nach oben führenden weiteren Siederohrabschnitt **11** verbunden. Dieser lange Rohrleitungsweg über die Abschnitte **9, 10, 11** dient der sicheren Überhitzung des Dampfes und dazu, Dampfschläge durch spontane Verdampfung in den Siederohren zu verhindern, so daß Dampf gleichmäßig hoher Temperatur und ohne Tröpfchen in das Brenngas in der Vorwärmungs- und Befeuchtungszone **2** einströmt.

Das aufzubereitende Brenngas wird dem Brenngaseinlaß **18** bei Umgebungstemperatur zugeführt und beim Durchlaufen der Vorwärmungs- und Befeuchtungszone **2** durch Aufnahme der in dem über die Dampfklappen **22** zugeführten Dampf enthaltenen Wärme und durch Wärmetausch mit dem die Strömungswege **5** und **6** durchströmenden Heißgas auf eine Temperatur von etwa 480°C am unteren Ende der

Vorwärmungs- und Befeuchtungszone 2 erhitzt. Durch Maßnahmen zur Verhinderung des Wärmeübergangs von den Strömungswegen 5 und 6 in die Vorreformierungszone 3 verläuft die Vorreformierungsreaktion in der Vorreformierungszone 3 im wesentlichen adiabatisch, wobei der Umstand, daß die Vorreformierungsreaktion endotherm verläuft, dazu führt, daß das Brenngas die Vorreformierungszone 3 mit einer niedrigeren Temperatur, etwa 360°C verläßt. In der sich anschließenden Brenngasaufheizungszone 4 wird das Brenngas dann schließlich auf eine Temperatur von etwa 550°C erwärmt, wie sie zum Betrieb der Brennstoffzelle als erforderlich angesehen wird. Das über den Einlaß 15 in das gemeinsame Gehäuse 1 eintretende Heißgas hat eine Temperatur von etwa 650°C und tritt nach dem Wärmetausch mit einer Temperatur von etwa 450°C am Auslaß 16 wieder aus dem gemeinsamen Gehäuse 1 aus.

Das gemeinsame Gehäuse 1 ist an seiner Außenseite mit einer Wärmeisolierung 21 versehen.

Zur Steuerung bzw. Regelung der Temperaturen in den der Aufbereitung des Brenngases dienenden Zonen 2, 3, 4 sind in dem zwischen dem Kreisringzylinder 7 und der Innenseite des gemeinsamen Gehäuses 1 vorhandenen kreiszylindrischen Raum Regelklappen 12 vorgesehen, welche durch Öffnungen in zwei übereinander angeordneten und gegeneinander verschiebbaren kreisringförmigen Elementen 13, 14 gebildet sind. Da dem den Kreisringzylinder 7 umgebenden äußeren Strömungsweg 6 eine wesentlich größere Wärmetauscherfläche verglichen mit dem das Innere des Kreisringzylinders 7 durchlaufenden Strömungsweg 5 zur Verfügung steht, genügt eine Drosselung des den äußeren Strömungsweg 6 durchlaufenden Brenngases, um eine ausreichende Möglichkeit zur Beeinflussung des Temperaturverlaufs in den Brenngasaufbereitungszone 2, 3, 4, insbesondere zur Kontrolle der Eintrittstemperatur in den Katalysatorbereich der Vorreformierungszone 3 zu haben.

#### Bezugszeichenliste

1	gemeinsames Gehäuse	
2	Vorwärmungs- und Befeuchtungszone	
3	Vorreformierungszone	
4	Brenngasaufheizungszone	
5	Strömungsweg innen	
6	Strömungsweg außen	
7	Kreisringzylinder	
8	Gasleitbleche	
9	Siederöhre	
10	Siederöhre	
11	Siederöhre	
12	Regelklappen	
13	kreisförmige Elemente	
14	kreisförmige Elemente	
15	Heißgas Einlaß	
16	Heißgas Auslaß	
17	Speisewasserpumpe	
18	Brenngaseinlaß	
19	Brenngasauslaß	
20	Verdampfer	
21	Wärmeisolierung	
22	Dampfdüsen	

#### Patentansprüche

1. Integriertes Brennstoffaufbereitungsmodul zur Aufbereitung des Brennstoffzellen Brenngases, dadurch gekennzeichnet, daß in einem gemeinsamen Gehäuse (1) eine Vorwärmungs- und Befeuchtungszone (2), eine

Vorreformierungszone (3) und eine Brenngasaufheizungszone (4) vorgesehen sind, und daß Mittel vorgesehen sind, um diese Zonen nacheinander mit dem Brenngas zu durchströmen.

2. Brennstoffaufbereitungsmodul nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Vorwärmungs- und Befeuchtungszone (2) mit Mitteln (22) zur Zuführung von Dampf versehen ist.

3. Brennstoffaufbereitungsmodul nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die Vorreformierungszone (3) ein Katalysatormaterial aufweist.

4. Brennstoffaufbereitungsmodul nach Anspruch 1, 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Brenngasaufheizungszone (4) mit einer Wärmetauscheranordnung versehen ist.

5. Brennstoffaufbereitungsmodul nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß das Brenngas die Vorwärmungs- und Befeuchtungszone (2), die Vorreformierungszone (3) und die Brenngasaufheizungszone (4) in der genannten Reihenfolge durchströmt.

6. Brennstoffaufbereitungsmodul nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß das gemeinsame Gehäuse (1) mit von einem Wärmetauschermedium durchströmten Strömungswegen (5, 6) versehen ist, die zur Übertragung von Wärme zumindest mit der Vorwärmungs- und Befeuchtungszone (2) und der Brenngasaufheizungszone (4) thermisch in Kontakt stehen.

7. Brennstoffaufbereitungsmodul nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß das Wärmetauschermedium im Gegenstrom zu dem Brenngasstrom durch das Brennstoffaufbereitungsmodul fließt.

8. Brennstoffaufbereitungsmodul nach Anspruch 6 oder 7, dadurch gekennzeichnet, daß das Wärmetauschermedium ein heißes Gas, insbesondere das heiße Abgas der Brennstoffzellenanlage ist.

9. Brennstoffaufbereitungsmodul nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß die von dem Brenngas durchströmten Zonen (2, 3, 4) in dem gemeinsamen Gehäuse (1) übereinander angeordnet sind und von dem Brenngas von oben nach unten durchströmt werden, und daß das Heißgas im Gegenstrom dazu von unten nach oben durch das Brennstoffaufbereitungsmodul strömt.

10. Brennstoffaufbereitungsmodul nach Anspruch 8 oder 9, dadurch gekennzeichnet, daß die von dem Brenngas durchströmten Zonen (2, 3, 4) in einem aufrecht stehenden Zylinder (7) mit kreisringförmigem Querschnitt übereinander angeordnet sind, und daß die von dem Heißgas durchströmten Strömungswege im Inneren und um den Zylinder herum vorgesehen sind.

11. Brennstoffaufbereitungsmodul nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß der Kreisringzylinder (7) Mittel aufweist, die das Brenngas auf einer spiralförmigen Bahn durch diesen führen.

12. Brennstoffaufbereitungsmodul nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Mittel zum Führen des Brenngases durch spiralförmige Gasleitbleche (8) gebildet sind.

13. Brennstoffaufbereitungsmodul nach einem der Ansprüche 6 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß in den von dem Wärmetauschermedium durchströmten Strömungswegen (5, 6) Einrichtungen (20) zum Verdampfen von der Vorwärmungs- und Befeuchtungszone (2) zuzuführendem Dampf vorgesehen sind.

14. Brennstoffaufbereitungsmodul nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, daß die Verdampfungsan-



richtungen (20) durch in den Strömungswegen (5, 6) des Wärmetauschermediums angeordnete Siederohre (9, 10, 11) gebildet sind.

15. Brennstoffaufbereitungsmodul nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß die Siederohre von unten nach oben durchströmte Abschnitte aufweisen, die im Inneren des Gehäuses um den Kreisringzylinder angeordnet sind.

16. Brennstoffaufbereitungsmodul nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, daß die Siederohre einen im Inneren des Kreisringzylinders (7) aufsteigenden Abschnitt (9), einen im Inneren des Kreisringzylinders (7) absteigenden Abschnitt (10) und einen auf der Außenseite des Kreisringzylinders (7) aufsteigenden Abschnitt (11) aufweisen, wobei das obere Ende des an der Außenseite aufsteigenden Abschnitts (11) mit den Mitteln (22) zur Zuführung von Dampf in die Vorwärmungs- und Befeuchtungszone (2) verbunden ist.

17. Brennstoffaufbereitungsmodul nach einem der Ansprüche 10 bis 16, dadurch gekennzeichnet, daß in dem den Kreisringzylinder (7) umgebenden Strömungsweg (6) für das Wärmetauschermedium Regelklappen (12) zur Drosselung des Stroms des Wärmetauschermediums vorgesehen sind.

18. Brennstoffaufbereitungsmodul nach Anspruch 17, dadurch gekennzeichnet, daß der den Kreisringzylinder (7) umgebende Strömungsweg (6) einen kreisringförmigen Querschnitt aufweist, und daß die Regelklappen (12) durch Öffnungen in zwei übereinander angeordneten, gegeneinander verschiebbaren kreisringförmigen Elementen (13, 14) gebildet sind.

19. Brennstoffaufbereitungsmodul nach einem der Ansprüche 10 bis 18, dadurch gekennzeichnet, daß das gemeinsame Gehäuse (1) kreisringförmig ist, und daß der Kreisringzylinder (7) zentrisch in dem gemeinsamen Gehäuse angeordnet ist.

20. Brennstoffaufbereitungsmodul nach einem der Ansprüche 6 bis 19, dadurch gekennzeichnet, daß das Brennstoffaufbereitungsmodul an der Unterseite einen Einlaß (15) und an der Oberseite einen Auslaß (16) für das Wärmetauschermedium aufweist.

21. Brennstoffzellenmodul nach einem der Ansprüche 1 bis 20, dadurch gekennzeichnet, daß das gemeinsame Gehäuse (1) wärmeisoliert ist.

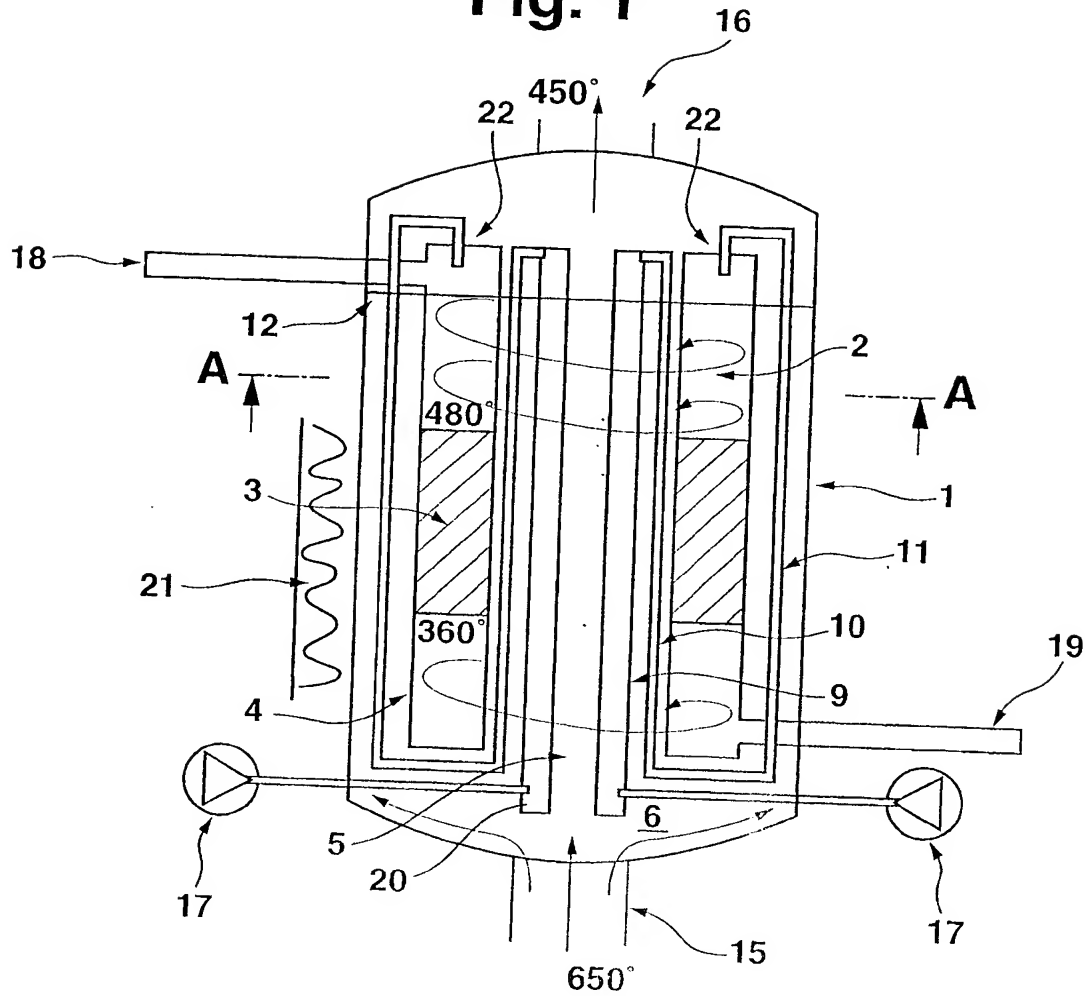
---

Hierzu 2 Seite(n) Zeichnungen

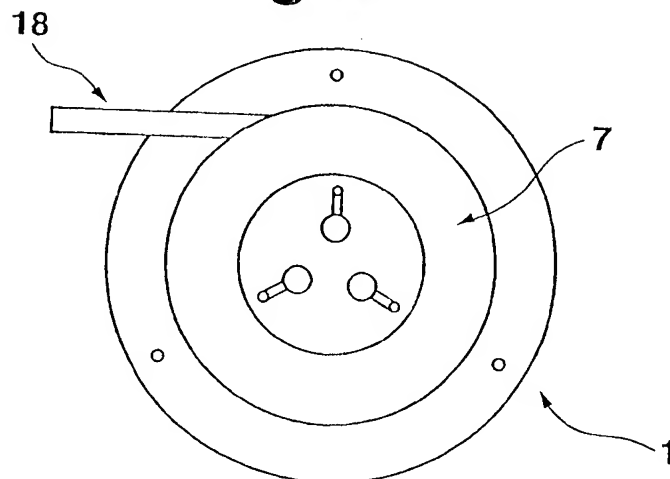
---

- Leerseite -

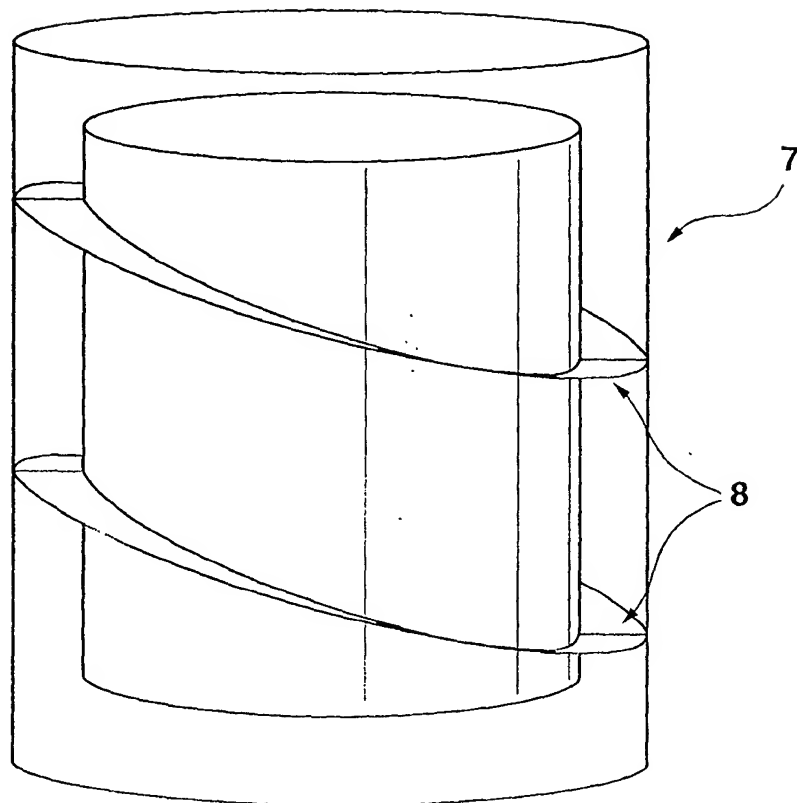
**Fig. 1**



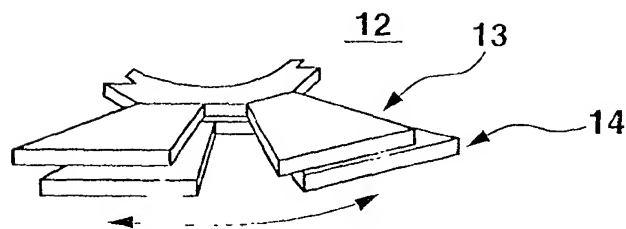
**Fig. 2**



**Fig. 3**



**Fig. 4**





(12)

**EUROPEAN PATENT APPLICATION**

(88) Date of publication A3:  
17.03.1999 Bulletin 1999/11

(51) Int. Cl.<sup>6</sup>: **H01M 8/06**, C01B 3/38,  
B01J 8/04, C01B 3/32,  
B01J 8/02

(43) Date of publication A2:  
**01.10.1997 Bulletin 1997/40**

(21) Application number: 97102595.2

(22) Date of filing: 18.02.1997

(84) Designated Contracting States:  
DE FR GB

(30) Priority: 26.03.1996 JP 97469/96  
26.11.1996 JP 331455/96

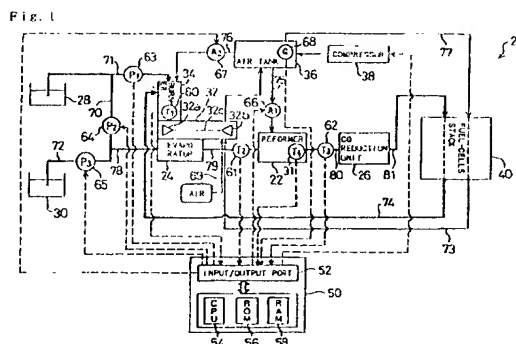
(71) Applicant:  
TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA  
Aichi-ken 471-8571 (JP)

(72) Inventor:  
Negishi, Yoshimasa,  
Toyota Jidosha K. K.  
Toyota-shi, Aichi-ken, 471 (JP)

(74) Representative:  
**Winter, Brandl, Fürniss, Hübner, Röss,  
 Kaiser, Polte, Kindermann**  
**Partnerschaft**  
**Patent- und Rechtsanwaltskanzlei**  
**Patentanwälte, Rechtsanwalt**  
**Alois-Steinecker-Strasse 22**  
**85354 Freising (DE)**

(54) **Method of and apparatus for refarming fuel and fuel cell system with fuel-reforming apparatus incorporated therein**

(57) Methanol supplied as a raw fuel is mixed with water, vaporized in an evaporator 24, and supplied to a reformer 22 as a raw fuel gas. The reformer 22 also receives a supply of the compressed air from an air tank 36. The raw fuel gas is mixed with the compressed air in the reformer 22. An oxidation reaction of methanol supplied as the raw fuel proceeds in the reformer 22 to generate hydrogen and carbon dioxide, while a steam reforming reaction of methanol simultaneously proceeds in the reformer 22 to generate hydrogen and carbon dioxide. The amount of heat required for the endothermic reforming reaction can be supplied by the oxidation reaction of methanol. No external heat source is accordingly required in the reformer 22 to supply the heat required for the reforming reaction.





European Patent  
Office

# EUROPEAN SEARCH REPORT

Application Number  
EP 97 10 2595

DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category	Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages	Relevant to claim	CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.Cl.6)
X	EP 0 112 613 A (ENGELHARD CORP) 4 July 1984 * page 5, line 4 - page 7, line 17 * * page 11, line 20 - page 12, line 2 * * page 13, line 14 - page 16, line 20 * * page 33, line 25 - page 37, line 2 * * claims; examples 3-8 *	1-17	H01M8/06 C01B3/38 B01J8/04 C01B3/32 B01J8/02
X	WO 94 26656 A (GASTEC NV ; LOOIJ FRANCINE VAN (NL); GEUS JOHN WILHELM (NL)) 24 November 1994 * page 5, line 11 - page 6, line 2 * * page 8, line 27 - page 10, line 11 * * claims *	1-17	
A	US 2 244 612 A (J. A. CROWLEY JR.) 3 June 1941 * claims *	12, 14	
A	DE 26 46 129 A (GATTYS VERFAHRENSTECH) 20 April 1978 * the whole document *	12, 15, 16	TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.Cl.6)  C01B B01J
The present search report has been drawn up for all claims			
Place of search <b>THE HAGUE</b>		Date of completion of the search <b>25 January 1999</b>	Examiner <b>Van der Poel, W</b>
<p>CATEGORY OF CITED DOCUMENTS</p> <p>X particularly relevant if taken alone Y particularly relevant if combined with another document of the same category A technological background O non-written disclosure P intermediate document</p> <p>T theory or principle underlying the invention E earlier patent document, but published on, or after the filing of D document cited in the application L document cited for other reasons &amp; member of the same patent family, corresponding document</p>			

EPO FORM 1503 03 82 (P04C01)

ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT  
ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.

EP 97 10 2595

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report.  
The members are as contained in the European Patent Office EDP file on  
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

25-01-1999

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0112613	A	04-07-1984	US 4844837 A	04-07-1989
			AU 572797 B	19-05-1988
			AU 1972883 A	05-04-1984
			CA 1217504 A	03-02-1987
			DK 448383 A, B,	31-03-1984
			IN 161251 A	31-10-1987
			JP 59097501 A	05-06-1984
			US 5023276 A	11-06-1991
			CA 1210242 A	26-08-1986
			US 4483691 A	20-11-1984
			CA 1210567 A	02-09-1986
			US 4863707 A	05-09-1989
			CA 1222631 A	09-06-1987
			IN 165477 A	28-10-1989
			IN 165478 A	28-10-1989
			IN 165479 A	28-10-1989
			IN 165480 A	28-10-1989
			US 4927857 A	22-05-1990
WO 9426656	A	24-11-1994	NL 9300833 A	01-12-1994
			AT 159231 T	15-11-1997
			AU 6858694 A	12-12-1994
			DE 69406311 D	20-11-1997
			DE 69406311 T	23-04-1998
			DK 738235 T	18-05-1998
			EP 0738235 A	23-10-1996
			ES 2110757 T	16-02-1998
			GR 3025614 T	31-03-1998
			JP 9502414 T	11-03-1997
			NO 954541 A	10-11-1995
			US 5714092 A	03-02-1998
US 2244612	A	03-06-1941	NONE	
DE 2646129	A	20-04-1978	NONE	

EPO FORM P0459

For more details about this annex, see Official Journal of the European Patent Office, No. 12/82





(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
11. Januar 2001 (11.01.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 01/02204 A1

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: B60K 6/00

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE00/02157

(22) Internationales Anmeldedatum:  
30. Juni 2000 (30.06.2000)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
199 31 064.5 1. Juli 1999 (01.07.1999) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von  
US): ATECS MANNESMANN AG [DE/DE]; Mannes-  
mannufer 2, D-40213 Düsseldorf (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): HERDEG, Wolfgang

[DE/DE]; Schulstr. 21, D-72141 Walddorfhäslach (DE).  
KLOS, Holger [DE/DE]; Dollmannstr. 15, D-81541  
München (DE). SATTLER, Martin [DE/DE]; Elsäweg  
10, D-97486 Königsberg (DE). REICHENBACH, Franz  
[DE/DE]; Giessener Str. 25, D-61118 Bad Vilbel (DE).  
WILHELM, Hans-Dieter [DE/DE]; Hattsteinerweg  
6, D-61267 Neu-Anspach (DE). HABRICH, Jürgen  
[DE/DE]; Genossenschaftsstr. 20, D-63512 Hainburg  
(DE). ECK, Karl [DE/DE]; Lenastr. 36, D-60318 Frank-  
furt (DE). KEUTZ, Markus [DE/DE]; An der Goldkante  
1, D-64380 Rossdorf (DE). ZAPP, Thomas [DE/DE];  
Sauerländerstr. 17, D-44265 Dortmund (DE).

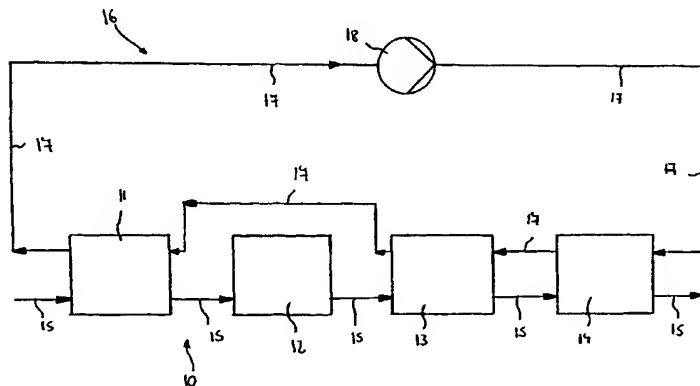
(74) Anwalt: MEISSNER, P., E.; Meissner & Meissner, Ho-  
henzollerndamm 89, D-14199 Berlin (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): JP, US.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: SYSTEM AND METHOD FOR PRODUCING AND/OR TREATING A FUEL, ESPECIALLY A FUEL FOR A FUEL  
CELL

(54) Bezeichnung: ANORDNUNG UND VERFAHREN ZUM ERZEUGEN UND/ODER AUFBEREITEN EINES BRENN-  
STOFFS, INSBESONDERE EINES BRENNSTOFFS FÜR EINE BRENNSTOFFZELLE



(57) Abstract: The invention relates to a system (10) for producing and/or treating a fuel, especially hydrogen, for a fuel cell for operating a motor vehicle. Said system comprises an evaporator (11) that functions as a heat sink and two reactor elements in the form of a shift reactor (13) that function as a heat source, and a reactor for the selective oxidation (14). The individual reactor elements (11; 13, 14) are linked with one another via a conduit (15). The aim of the invention is to provide a simple and inexpensive means for cooling and/or heating the individual reactor elements (11; 13, 14). To this end, the inventive system is provided with a heating/cooling device (16) that comprises a heating/cooling device for the evaporator (11) and least one heating/cooling device for the shift reactor (13) and the reactor for the selective oxidation (14). The individual heating/cooling devices are interlinked in a closed circuit via a flow duct (17) for the purpose of heat transport. A suitable oil is used as the heating/cooling medium and flows through the flow duct (17). The heat generated in the reactor elements (13, 14) is absorbed via the inventive system (10) via the corresponding heating/cooling devices and is transported to the evaporator (11) via the flow duct (17). The heat is then conveyed to the evaporator (11) via the respective heating/cooling device.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 01/02204 A1



(84) **Bestimmungsstaaten (regional):** europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

*Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.*

**Veröffentlicht:**

- *Mit internationalem Recherchenbericht.*
- *Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen.*

(57) **Zusammenfassung:** Es wird eine Anordnung (10) zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs, insbesondere von Wasserstoff, für eine Brennstoffzelle zum Betreiben eines Fahrzeugs beschrieben, die einen als Wärmesenke fungierenden Verdampfer (11) und zwei als Wärmequelle fungierende Reaktorelemente in Form eines Shift-Reaktors (13) und eines Reaktors zur selektiven Oxidation (14) aufweist. Die einzelnen Reaktorelemente (11; 13, 14) sind über eine Leitung (15) miteinander verbunden. Um auf einfache und kostengünstige Weise eine Kühlung beziehungsweise Erwärmung der einzelnen Reaktorelemente (11; 13, 14) vornehmen zu können, ist erfindungsgemäß eine Heiz-/Kühlvorrichtung (16) vorgesehen, die eine Heiz-/Kühleinrichtung für den Verdampfer (11) und wenigstens eine Heiz-/Kühleinrichtung für den Shift-Reaktor (13) und den Reaktor zur selektiven Oxidation (14) aufweist. Die einzelnen Heiz-/Kühleinrichtungen sind zum Wärmetransport über eine Strömungsleitung (17) in einem geschlossenen Kreislauf miteinander verbunden. Durch die Strömungsleitung (17) strömt als Heiz-/Kühlmedium ein geeignetes Öl. Über die erfindungsgemäße Anordnung (10) wird die in den Reaktorelementen (13, 14) erzeugte Wärme über die entsprechenden Heiz-/Kühleinrichtungen aufgenommen und über die Strömungsleitung (17) zum Verdampfer (11) transportiert und dort über die entsprechende Heiz-/Kühleinrichtung an diesen abgegeben.

5      **Anordnung und Verfahren zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines  
Brennstoffs, insbesondere eines Brennstoffs für eine Brennstoffzelle**

Beschreibung

10

Die vorliegende Erfindung betrifft eine Anordnung zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs, insbesondere eines Brennstoffs für eine Brennstoffzelle, mit wenigstens einem als Wärmesenke fungierenden Reaktorelement und wenigstens einem als Wärmequelle fungierenden Reaktorelement. Weiterhin betrifft die Erfindung  
15 ein Verfahren zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines solchen Brennstoffs.

Brennstoffzellen sind bereits seit langem bekannt und haben insbesondere im Bereich der Automobilindustrie in den letzten Jahren erheblich an Bedeutung gewonnen.

20

Ähnlich wie Batteriesysteme erzeugen Brennstoffzellen elektrische Energie auf chemischem Wege, wobei die einzelnen Reaktanten kontinuierlich zugeführt werden und das Reaktionsprodukt kontinuierlich abgeführt wird. Dabei liegt den Brennstoffzellen ein Wirkprinzip zu Grunde, bei dem sich elektrisch neutrale Moleküle oder Atome miteinander verbinden und dabei Elektronen austauschen. Dieser Vorgang  
25 wird als Redoxprozeß bezeichnet. Bei der Brennstoffzelle werden die Oxidations- und Reduktionsprozesse räumlich getrennt. Die bei der Reduktion abgegebenen Elektronen lassen sich als Strom durch einen Verbraucher leiten, beispielsweise den Elektromotor eines Automobils.

30

Als gasförmige Reaktionspartner für die Brennstoffzelle werden beispielsweise Wasserstoff als Brennstoff und Sauerstoff als Oxidationsmittel verwendet. Der Sauerstoff kann einfach über die angesaugte Umgebungsluft bereitgestellt werden,

wohingegen der Wasserstoff in der Regel in einem chemischen Prozeß hergestellt werden muß. Dies wird beispielsweise erreicht, indem in Erdgas oder Methanol befindliche Kohlenwasserstoffe durch Reformierung oder dergleichen in ein wasserstoffreiches Gas umgewandelt werden. Weiterhin ist es auch denkbar,  
5 Wasserstoff durch das Verfahren der sogenannten partiellen Oxidation (POX) herzustellen.

In allen Fällen weist die erforderliche Anordnung zum Erzeugen und/oder Aufbereiten des Brennstoffs eine Reihe verschiedener Reaktorelemente auf, die über  
10 entsprechende Leitungen miteinander verbunden sind, so daß der Brennstoff während seiner Erzeugung beziehungsweise Aufbereitung die einzelnen Reaktorelemente durchströmen kann.

In einigen der Reaktorelemente finden dabei exotherme Reaktionen statt, d.h. es wird  
15 Wärme frei. In anderen Reaktorelementen wird hingegen Wärme benötigt. Bisher ist es üblich, daß jedes einzelne Reaktorelement über eine geeignete Heiz-/Kühleinrichtung verfügt. Diese Heiz-/Kühleinrichtung erzeugt die in dem Reaktorelement erforderliche Temperatur. Für Reaktorelemente mit exothermen Reaktionen bedeutet dies, daß die in den Reaktorelementen erzeugte Wärme über die  
20 Heiz-/Kühleinrichtungen abgeführt wird. In denjenigen Reaktorelementen, in denen Wärme benötigt wird, wird diese Wärme über die Heiz-/Kühleinrichtungen bereitgestellt.

Die bisher durchgeführte Heizung beziehungsweise Kühlung der einzelnen  
25 Reaktorelemente hat jedoch eine Reihe von Nachteilen. So muß jedes Reaktorelement einzeln und unabhängig von den anderen Reaktorelementen gekühlt beziehungsweise geheizt werden, was konstruktiv aufwendig und relativ kostenintensiv ist. Weiterhin wird für diese Art der Heizung beziehungsweise Kühlung eine große Menge an Energie benötigt. Schließlich kann die in den Reaktorelementen mit exothermen  
30 Reaktionen erzeugte Wärme nicht genutzt werden, wodurch sie für den Gesamtprozeß verloren geht.

Ausgehend vom genannten Stand der Technik liegt der vorliegenden Erfindung die Aufgabe zu Grunde, eine Anordnung zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs der eingangs genannten Art derart weiterzubilden, daß die beschriebenen Nachteile vermieden werden. Insbesondere soll eine Anordnung bereitgestellt werden, bei der auf konstruktiv einfache und kostengünstige Weise einzelne Reaktorelemente gekühlt beziehungsweise geheizt werden können. Weiterhin soll ein entsprechend verbessertes Verfahren bereitgestellt werden.

Die Aufgabe wird gemäß dem ersten Aspekt der Erfindung durch eine Weiterbildung der eingangs beschriebenen Anordnung zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs, insbesondere eines Brennstoffs für eine Brennstoffzelle gelöst, die erfindungsgemäß dadurch gekennzeichnet ist, daß eine Heiz-/Kühlvorrichtung vorgesehen ist, daß die Heiz-/Kühlvorrichtung wenigstens eine Heiz-/Kühleinrichtung für das wenigstens eine als Wärmesenke fungierende Reaktorelement und wenigstens eine Heiz-/Kühleinrichtung für das wenigstens eine als Wärmequelle fungierende Reaktorelement aufweist und daß die Heiz-/Kühleinrichtungen zum Wärmetransport über eine Strömungsleitung miteinander verbunden sind.

Auf diese Weise können die einzelnen Reaktorelemente je nach Bedarf entweder geheizt oder gekühlt werden, ohne daß, wie bisher notwendig, jedes einzelne Reaktorelement über eine eigene separate Heiz-/Kühlvorrichtung verfügen muß. Dabei basiert die Erfindung unter anderem auf der Grundidee, daß die einzelnen Heiz-/Kühleinrichtungen der jeweiligen Reaktorelemente über eine Strömungsleitung derart miteinander verbunden sind, daß ein Wärmetransport zwischen den einzelnen Heiz-/Kühleinrichtungen und damit den einzelnen Reaktorelementen entsteht.

Weist die Anordnung zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs beispielsweise einen oder mehrere als Wärmequelle fungierende Reaktorelemente auf, laufen in diesen Reaktorelementen exotherme Reaktionen ab, was bedeutet, daß dort Wärme frei wird. Diese Wärme wird an die jeweiligen Heiz-/Kühleinrichtungen abgegeben.

Weist die Anordnung weiterhin wenigstens ein als Wärmesenke fungierendes Reaktorelement auf, was bedeutet, daß dieses Reaktorelement für die stattfindenden Reaktionen Wärme benötigt, kann die von den als Wärmequelle fungierenden Reaktorelementen abgegebene Wärme zur Erwärmung des als Wärmesenke fungierenden Reaktorelements herangezogen werden. Dazu wird die Wärme von der Heiz-/Kühleinrichtung für das wenigstens eine als Wärmequelle fungierende Reaktorelement zu der Heiz-/Kühleinrichtung für das wenigstens eine als Wärmesenke fungierende Reaktorelement transportiert und an dieses abgegeben. Somit geht die erzeugte Wärmeenergie nicht verloren. Durch die erfindungsgemäße Anordnung kann die Wärme in solchen Reaktorelementen mit exothermen Reaktionen aufgenommen und zu solchen Reaktorelementen übertragen werden, bei denen ein Wärmebedarf besteht.

Bevorzugte Ausführungsformen der erfindungsgemäßen Anordnung ergeben sich aus den Unteransprüchen.

Vorteilhaft können die Heiz-/Kühleinrichtungen über die Strömungsleitung als geschlossener Kreislauf miteinander verbunden sein. Hierdurch kann eine konstruktiv besonders einfach ausgebildete Heiz-/Kühlvorrichtung bereitgestellt werden, mit der die erforderlichen Wärmehaushalte in den einzelnen Reaktorelementen auf einfache Weise gesteuert werden können.

In weiterer Ausgestaltung kann zur Durchströmung der Heiz-/Kühleinrichtungen und der Strömungsleitung ein Heiz-/Kühlmedium vorgesehen sein. Über ein solches Heiz-/Kühlmedium läßt sich die Wärmeaufnahme beziehungsweise Wärmeabgabe genau definiert einstellen. Ein vorteilhaftes Heiz-/Kühlmedium ist beispielsweise ein Öl, und hier insbesondere ein hoch wärmebeständiges Öl. Derartige Öle sind bereits aus dem Stand der Technik bekannt. Die Erfindung ist jedoch nicht auf die Verwendung von Öl als Heiz-/Kühlmedium beschränkt. So sind beispielsweise auch andere Heiz-/Kühlmedien in flüssiger oder gasförmiger Form denkbar und möglich. Wichtig ist lediglich, daß das verwendete Heiz-/Kühlmedium geeignet ist, die in einzelnen

Reaktorelementen erzeugte Wärme aufzunehmen und in anderen Reaktorelementen auf einfache Weise wieder abzugeben.

In weiterer Ausgestaltung kann in der Strömungsleitung wenigstens eine Pumpe vorgesehen sein. Über eine solche Pumpe läßt sich die Strömungsgeschwindigkeit und der Durchsatz des Heiz-/Kühlmediums in der Strömungsleitung und den Heiz-/Kühleinrichtungen einstellen. Über die Strömungsgeschwindigkeit des Heiz-/Kühlmediums wird unter anderem die Aufnahmerate beziehungsweise Abgaberate der Wärme im Heiz-/Kühlmedium geregelt.

Vorzugsweise ist die Strömungsrichtung in der Heiz-/Kühlvorrichtung von der wenigstens einen Heiz-/Kühleinrichtung für das als Wärmequelle fungierende wenigstens eine Reaktorelement zur wenigstens einen Heiz-/Kühleinrichtung für das als Wärmesenke fungierende wenigstens eine Reaktorelement eingestellt. Auf diese Weise kann die Wärmeenergie von dem wenigstens einen als Wärmequelle fungierenden Reaktorelement zu dem wenigstens einen als Wärmesenke fungierenden Reaktorelement transportiert werden. Wird beispielsweise ein Heiz-/Kühlmedium verwendet, wärmt sich dieses beim Durchlauf des wenigstens einen als Wärmequelle fungierenden Reaktorelements auf und nimmt dabei die Wärme mit.

Dadurch kühlt sich das als Wärmequelle fungierende Reaktorelement ab. Die aufgenommene Wärme wird zu dem wenigstens einen als Wärmesenke fungierenden Reaktorelement transportiert. Dort wird die Wärme abgegeben, wodurch sich das Heiz-/Kühlmedium abkühlt. Das nunmehr wiederum abgekühlte Heiz-/Kühlmedium wird über die Strömungsleitung erneut zu den als Wärmequelle fungierenden Reaktorelementen transportiert, wo es erneut Wärme aufnehmen kann. Da die Anzahl und Verbindung der einzelnen Reaktorelemente untereinander je nach Bedarf und Anwendungsfall unterschiedlich sein kann, ist selbstverständlich auch eine andere Einstellung der Strömungsrichtung denkbar.

Vorteilhaft kann die wenigstens eine Heiz-/Kühleinrichtung als Wärmetauscher in Form einer Kühlschlange und/oder eines Kühlmantels ausgebildet sein. Je nach Bedarf und Anwendungsfall und insbesondere je nach der Menge der aufzunehmenden

beziehungsweise abzugebenden Wärme kann die Heiz-/Kühleinrichtung beliebig ausgebildet sein. Soll eine große Menge an Wärme aufgenommen werden, ist es sinnvoll, wenn die Heiz-/Kühleinrichtung im Reaktorelement eine große Oberfläche aufweist. Die Anordnung der Heiz-/Kühleinrichtung im Oberflächenbereich der Reaktorelemente oder innerhalb der Reaktorelemente kann je nach Bedarf beliebig erfolgen. Die Erfindung ist nicht auf besondere Ausgestaltungsformen der Heiz-/Kühleinrichtungen beschränkt.

In weiterer Ausgestaltung kann das wenigstens eine als Wärmesenke fungierende Reaktorelement als Verdampfer ausgebildet sein. Ein solcher Verdampfer ist beispielsweise erforderlich, wenn Wasserstoff aus Methanol oder Erdgas reformiert werden soll.

In weiterer Ausgestaltung kann das wenigstens eine als Wärmequelle fungierende Reaktorelement als Shift-Reaktor und/oder als Reaktor für eine selektive Oxidation ausgebildet sein. Diese beiden Reaktorelemente sind erforderlich, wenn der Wasserstoff durch das Verfahren der partiellen Oxidation hergestellt wird. Hierbei wird das Gas durch eine homogene Wassergasreaktion ( $\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$ ) in dem Shift-Reaktor gereinigt und in der nachfolgenden Stufe –der selektiven Oxidation– feingereinigt.

Vorzugsweise kann zwischen dem einen als Wärmesenke fungierenden Reaktorelement und dem wenigstens einen als Wärmequelle fungierenden Reaktorelement ein Reformier vorgesehen sein.

In weiterer Ausgestaltung kann die Strömungsrichtung des Brennstoffs von dem wenigstens einen als Wärmesenke fungierenden Reaktorelement zu dem wenigstens einen als Wärmequelle fungierenden Reaktorelement hin eingestellt sein. In einem solchen Fall ist die Strömungsrichtung des Brennstoffs entgegengesetzt zur Strömungsrichtung des Wärmetransports über die Heiz-/Kühlvorrichtung eingestellt. Je nach Art und Anzahl der verwendeten Reaktorelemente kann auch eine andere Strömungsrichtung eingestellt sein.



Gemäß dem zweiten Aspekt der vorliegenden Erfindung wird ein Verfahren zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs, insbesondere eines Brennstoffs für eine Brennstoffzelle, insbesondere unter Verwendung einer wie vorstehend  
5 beschriebenen erfindungsgemäßen Anordnung bereitgestellt, wobei der Brennstoff wenigstens ein als Wärmesenke fungierendes und wenigstens ein als Wärmequelle fungierendes Reaktorelement durchströmt. Das Verfahren ist erfindungsgemäß dadurch gekennzeichnet, daß über eine Heiz-/Kühlvorrichtung in den Reaktorelementen jeweils eine geeignete Prozeßtemperatur eingestellt wird, indem die  
10 in dem wenigstens einen als Wärmequelle fungierenden Reaktorelement erzeugte Wärme über eine Heiz-/Kühleinrichtung aufgenommen und über eine Strömungsleitung zu einer Heiz-/Kühleinrichtung für das als Wärmesenke fungierende Reaktorelement transportiert und dort an das Reaktorelement abgegeben wird.

15 Durch das erfindungsgemäße Verfahren wird erreicht, daß die einzelnen Reaktorelemente nicht mehr aufwendig gekühlt werden müssen und auch keine Wärme mehr verloren geht. Vielmehr wird die Wärme von den als Wärmequelle fungierenden Reaktorelementen auf einfache Weise zu solchen Reaktorelementen transportiert, bei denen ein Wärmebedarf besteht. Zu den Vorteilen, Effekten,  
20 Wirkungen und der Funktionsweise des erfindungsgemäßen Verfahrens wird auf die vorstehenden Ausführungen zur erfindungsgemäßen Anordnung voll inhaltlich Bezug genommen und hiermit verwiesen.

Vorteilhafte Ausführungsformen des Verfahrens ergeben sich aus den  
25 Unteransprüchen.

Vorzugsweise können die Heiz-/Kühleinrichtungen und die Strömungsleitung von einem Heiz-/Kühlmedium durchströmt werden.

30 In weiterer Ausgestaltung können die Heiz-/Kühleinrichtungen und die Strömungsleitung als geschlossener Kreislauf ausgebildet sein und von einem Heiz-/Kühlmedium durchströmt werden.

Vorteilhaft kann die Strömungsgeschwindigkeit des Heiz-/Kühlmediums in den Heiz-/Kühleinrichtungen und der Strömungsleitung über wenigstens eine Pumpe geregelt werden.

- 5 Vorzugsweise –jedoch nicht ausschließlich- kann die Strömungsrichtung des Brennstoffs entgegengesetzt zur Richtung des Wärmetransports zwischen den Heiz-/Kühleinrichtungen eingestellt werden.

- 10 Die vorstehend beschriebene erfindungsgemäße Anordnung sowie das erfindungsgemäße Verfahren können besonders vorteilhaft zum Herstellen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs für eine Brennstoffzelle zum Betreiben eines Fahrzeugs verwendet werden.

- 15 Insbesondere bei Verwendung für ein Fahrzeug besteht die Anordnung zum Erzeugen und/oder Aufbereiten des Brennstoffs oftmals aus einem Verdampfer (z.B. für Methanol), einem Reformer, einem Shift-Reaktor und einem Reaktor zur selektiven Oxidation. In diesem Fall befinden sich häufig drei dieser vier Reaktoren (alle bis auf den Reformer) auf fast gleichem Temperaturniveau. In zwei dieser Reaktoren, nämlich in dem Shift-Reaktor und der selektiven Oxidation läuft eine exotherme Reaktion ab,  
20 d.h. es wird Wärme frei. In dem Verdampfer wird Wärme benötigt. Die benötigte Wärme wird über die in den beiden anderen Reaktoren gewonnene Wärme bereitgestellt.

- 25 Ein bevorzugtes Anwendungsgebiet für die Anordnung und das Verfahren ist beispielsweise das Gebiet der Fahrzeugantriebe. Dieses bietet zur Zeit große Einsatzmöglichkeiten für Brennstoffzellen; es sind aber auch andere Einsatzmöglichkeiten denkbar. Zu nennen sind hier beispielsweise Brennstoffzellen für mobile Geräte wie Computer oder mobile Telefone bis hin zu Kraftwerksanlagen. Auch eignet sich die Brennstoffzellentechnik für die dezentrale Energieversorgung von  
30 Häusern, Industrieanlagen oder dergleichen.

Die vorliegende Erfindung ist nicht auf besondere Brennstoffzellentypen beschränkt, so daß die Erfindung in Verbindung mit allen Brennstoffzellentypen verwendet werden kann. Derartige Brennstoffzellen sind beispielsweise alkalische Brennstoffzellen (AFC), protonenleitende Brennstoffzellen (PEMFC), phosphorsaure Brennstoffzellen (PAFC), Schmelzkarbonat-Brennstoffzellen (MCFC), Festoxid-Brennstoffzellen (SOFC) oder dergleichen.

Die erfindungsgemäße Anordnung zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs kann beispielsweise, jedoch nicht ausschließlich, zur Erzeugung von Wasserstoff aus Methanol, Methan, Benzin, Erdgas, Kohlegas, Biogas oder dergleichen verwendet werden.

Die Erfindung wird nun auf exemplarische Weise an Hand von Ausführungsbeispielen unter Bezugnahme auf die beiliegende Zeichnung näher erläutert. Es zeigt:

Fig.1 in schematischer Ansicht eine erste Ausführungsform der erfindungsgemäßen Anordnung zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs, insbesondere eines Brennstoffs für eine Brennstoffzelle; und  
Fig.2 eine weitere Ausführungsform der erfindungsgemäßen Anordnung zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs.

In Fig.1 ist eine Anordnung 10 zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs, insbesondere eines Brennstoffs für eine Brennstoffzelle dargestellt. Bei dem zu erzeugenden beziehungsweise aufzubereitenden Brennstoff handelt es sich im vorliegenden Fall um Wasserstoff.

Der Wasserstoff wird aus einem kohlenwasserstoffhaltigen Brennstoff in der aus einer Reihe von Reaktorelementen bestehenden Anlage 10 erzeugt, die über eine Leitung 15 miteinander verbunden sind. Bei diesen Reaktorelementen handelt es sich in der Reihenfolge der durch die Pfeile in der Leitung 15 dargestellten Strömungsrichtung des Brennstoffs bzw. Wasserstoffs um einen Verdampfer 11, einen Reformier 12, einen Shift-Reaktor 13 und einen Reaktor zur selektiven Oxidation 14.

In dem Verdampfer 11 wird der als Ausgangsmaterial zugeführte Brennstoff (z.B. Methanol) zunächst verdampft, wobei für diesen Prozeßschritt Wärme erforderlich ist. Bei dem Verdampfer 11 handelt es sich somit um ein als Wärmesenke fungierendes Reaktorelement. Bei dem Shift-Reaktor 13 und den Reaktor zur selektiven Oxidation 14 finden hingegen exotherme Reaktionen statt, d.h. hier wird Wärme erzeugt. Zur Einstellung einer geeigneten Temperatur in diesen Reaktorelementen muß die erzeugte Wärme abgeführt werden.

Zur Heizung beziehungsweise Kühlung der einzelnen Reaktorelemente ist eine Heiz-/Kühlvorrichtung 16 vorgesehen. Die Heiz-/Kühlvorrichtung 16 besteht aus einer Reihe nicht näher dargestellter Heiz-/Kühleinrichtungen, die jeweils als Wärmetauscher in Form von Rohrschlangen in den Reaktorelementen ausgebildet sind. Die einzelnen Heiz-/Kühleinrichtungen sind über eine Strömungsleitung 17 miteinander verbunden.

Wie aus der Figur zu ersehen ist, sind die Strömungsleitung 17 und die einzelnen Heiz-/Kühleinrichtungen als geschlossener Kreislauf ausgebildet. In dem geschlossenen Kreislauf der Heiz-/Kühlvorrichtung 16 ist ein geeignetes Heiz-/Kühlmedium vorgesehen, im vorliegenden Fall ein hochwärmebeständiges Öl. Zur Einstellung der Strömungsgeschwindigkeit des Öls ist in der Strömungsleitung 17 weiterhin eine Pumpe 18 vorgesehen.

Nachfolgend wird nun die Funktionsweise des Verfahrens zum Erzeugen und/oder Aufbereiten von Wasserstoff beschrieben.

Bei der Herstellung des Wasserstoffs wird im Verdampfer 11 Wärmeenergie benötigt, während in dem Shift-Reaktor 13 und in dem Reaktor zur selektiven Oxidation 14 auf Grund der exothermen Reaktionen Wärme entsteht. Wird nun in der Heiz-/Kühleinrichtung 16 ein wie oben beschriebener Ölkreislauf zum Wärmetransport aufgebaut, in dem das Öl die einzelnen Reaktorelemente der Reihe nach durchläuft, kann der Wärmeenergiegehalt von den als Wärmequelle fungierenden Reaktorelementen, nämlich dem Shift-Reaktor 13 und dem Reaktor zur selektiven Oxidation 14 zu dem als Wärmesenke fungierenden Reaktorelement, nämlich dem

Verdampfer 11 transportiert werde. Das durch den Verdampfer 11 abgekühlte Öl wärmt sich beim Durchlauf durch die selektive Oxidation 14 auf und nimmt die Wärme mit. Es folgt der Shift-Reaktor 13, der ebenfalls eine Erwärmung des Öls bewirkt. Nach dem Shift-Reaktor 13 gibt das Öl die aufgenommene Wärme im Verdampfer 11 ab.  
5 Durch die Ausgestaltung der Heiz-/Kühleinrichtung 16 als geschlossener Kreislauf kann dieser Wärmeaustausch im wesentlichen verlustfrei durchgeführt werden.

Der in Fig.1 zur Erzeugung des Wasserstoffs ebenfalls erforderliche Reformer 12, der zwischen dem Verdampfer 11 und dem Shift-Reaktor 13 angeordnet ist, benötigt  
10 ebenfalls Wärme, allerdings auf einem anderen Temperaturniveau als die übrigen Reaktorelemente. So ist es beispielsweise möglich, daß der Reformer 12 mehr Wärme benötigt, als durch die exothermen Reaktionen im Shift-Reaktor 13 und in dem Reaktor zur selektiven Oxidation 14 erzeugt und abgegeben wird. Deshalb ist der Reformer 12 im vorliegenden Fall nicht mit der Heiz-/Kühlvorrichtung 16 verbunden, so  
15 daß die Strömungsleitung 17 im Bereich des Reformers 12 an diesem vorbeiführt.

Wie aus Fig.1 weiterhin zu ersehen ist, ist die Strömungsrichtung des Brennstoffs, die durch entsprechende Pfeile in der Leitung 15 dargestellt ist, entgegengesetzt zur Strömungsrichtung des Heiz-/Kühlmediums durch die Heiz-/Kühlvorrichtung 16, die  
20 ebenfalls durch entsprechende Pfeile in der Strömungsleitung 17 dargestellt ist, eingestellt.

In Fig.2 ist eine weitere Ausführungsform der erfindungsgemäßen Anordnung 10 zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs dargestellt, wobei baugleiche  
25 Elemente wie in Fig.1 mit gleichen Bezugsziffern bezeichnet sind.

Der Brennstoff wird wiederum in den Reaktorelementen Verdampfer 11, Reformer 12, Shift-Reaktor 13 und Reaktor zur selektiven Oxidation 14 erzeugt oder aufbereitet, die über eine Leitung 15 miteinander verbunden sind. Die Heizung beziehungsweise  
30 Kühlung der einzelnen Reaktorelemente erfolgt über die Heiz-/Kühlvorrichtung 16.

Bei dem Ausführungsbeispiel gemäß Fig.2 ist jedoch die Verbindung der einzelnen Heiz-/Kühleinrichtungen in den jeweiligen Reaktorelementen über die Strömungsleitung 17 anders gewählt.

5 Wenn etwa das Temperaturniveau der selektiven Oxidation 14 –beispielsweise durch den Einsatz eines anderen Katalysators- über dem Temperaturniveau der im Shift-Reaktor 13 ablaufenden Shift-Reaktion liegt, kann es sinnvoll sein, zuerst den Shift-Reaktor 13 mit dem kalten Heiz/Kühlmedium vom Verdampfer 12 anzufahren, das dem Shift-Reaktor 13 über die Strömungsleitung 17 und mit Unterstützung der Pumpe  
10 18 zugeführt wird.

Im Shift-Reaktor 13 findet aufgrund der exothermen Reaktionen dann die oben beschriebene Erwärmung des Heiz-/Kühlmediums statt. Anschließend wird das Heiz-Kühlmedium durch die Heiz-/Kühleinrichtung des Reaktors zur selektiven Oxidation 14  
15 geleitet, wo es sich weiter erwärmt. Danach wird das heiße Heiz-/Kühlmedium dem Verdampfer 11 zur Wärmeabgabe zugeführt.

Die erfindungsgemäßen Anordnung eignet sich in besonderer Weise für den Einsatz in einem Fahrzeug, um aus einem getankten Brennstoff (z.B. Methanol oder Erdgas)  
20 während der Fahrt Wasserstoff in ausreichender Menge und ausreichendem Reinheitsgrad zu erzeugen, damit dieser Wasserstoff einer Brennstoffzelle als Brennstoff zugeführt werden kann, die den erforderlichen elektrischen Strom für den elektrischen Fohrantrieb dieses Fahrzeugs liefert.

**Bezugszeichenlist**

	10	=	Anordnung zum Erzeugen/Aufbereiten eines Brennstoffs
	11	=	Verdampfer
5	12	=	Reformer
	13	=	Shift-Reaktor
	14	=	selektive Oxidation
	15	=	Leitung
	16	=	Heiz-/Kühlvorrichtung
10	17	=	Strömungsleitung
	18	=	Pumpe

**Patentanspruch**

1. Anordnung zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs,  
insbesondere eines Brennstoffs für eine Brennstoffzelle, mit wenigstens einem  
als Wärmesenke fungierenden Reaktorelement (11) und mit wenigstens einem  
5 als Wärmequelle fungierenden Reaktorelement (13, 14),  
dadurch gekennzeichnet,  
daß eine Heiz-/Kühlvorrichtung (16) vorgesehen ist, daß die Heiz-  
/Kühlvorrichtung (16) wenigstens eine Heiz-/Kühleinrichtung für das wenigstens  
eine als Wärmesenke fungierende Reaktorelement (11) und wenigstens eine  
10 Heiz-/Kühleinrichtung für das wenigstens eine als Wärmequelle fungierende  
Reaktorelement (13, 14) aufweist und daß die Heiz-/Kühleinrichtungen zum  
Wärmetransport über eine Strömungsleitung (17) **für ein Heiz/Kühlmedium**  
miteinander verbunden sind.
2. Anordnung nach Anspruch 1,  
15 dadurch gekennzeichnet,  
daß die Heiz-/Kühleinrichtungen über die Strömungsleitung (17) in einem  
geschlossenen Kreislauf miteinander verbunden sind.
3. Anordnung nach Anspruch 1 oder 2,  
20 dadurch gekennzeichnet,  
daß als Heiz-/Kühlmedium ein hochwärmebeständiges Öl vorgesehen ist.
4. Anordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 3,  
dadurch gekennzeichnet,  
25 daß in der Strömungsleitung (17) wenigstens eine Pumpe (18) vorgesehen ist.
5. Anordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 4,  
dadurch gekennzeichnet,  
30 daß die wenigstens eine Heiz-/Kühleinrichtung als Wärmetauscher in Form  
einer Rohrschlange und/oder als Kühlmantel ausgebildet ist.
6. Anordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 5,  
dadurch gekennzeichnet,



daß das wenigstens eine als Wärmesenke fungierende Reaktorelement als Verdampfer (11) ausgebildet ist.

- 5 7. Anordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 6,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß das wenigstens eine als Wärmequelle fungierende Reaktorelement als Shift-Reaktor (13) und/oder als Reaktor zur selektiven Oxidation (14) ausgebildet ist.
- 10 8. Anordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 7,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß zwischen dem wenigstens einen als Wärmesenke fungierenden Reaktorelement (11) und dem wenigstens einen als Wärmequelle fungierenden Reaktorelement (13, 14) ein Reformier (12) vorgesehen ist.
- 15 9. Anordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 8,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Strömungsrichtung des Brennstoffs von dem wenigstens einen als Wärmesenke fungierenden Reaktorelement (11) zu dem wenigstens einen als Wärmequelle fungierenden Reaktorelement (13, 14) hin eingestellt ist.
- 20 10. Verfahren zum Erzeugen und/oder Aufbereiten eines Brennstoffs, insbesondere eines Brennstoffs für eine Brennstoffzelle, insbesondere unter Verwendung einer Anordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 10, wobei der Brennstoff wenigstens ein als Wärmesenke fungierendes und wenigstens ein als Wärmequelle fungierendes Reaktorelement durchströmt,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß über eine Heiz-/Kühleinrichtung in den Reaktorelementen jeweils eine geeignete Prozeßtemperatur eingestellt wird, indem die in dem wenigstens einen als Wärmequelle fungierenden Reaktorelement erzeugte Wärme über  
25 eine Heiz-/Kühleinrichtung aufgenommen und über eine Strömungsleitung für ein Heiz/Kühlmedium zu einer Heiz-/Kühleinrichtung für das als Wärmesenke fungierende Reaktorelement transportiert und dort an das Reaktorelement abgegeben wird.
- 30 35

11. Verfahren nach Anspruch 10,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß das Heiz-/Kühlmedium durch die Strömungsleitung in einem  
geschlossenen Kreislauf geführt wird..
12. Verfahren nach Anspruch 10 oder 11,  
dadurch gekennzeichnet,  
daß die Strömungsgeschwindigkeit des Heiz-/Kühlmediums in den Heiz-  
/Kühleinrichtungen und der Strömungsleitung über wenigstens eine Pumpe  
geregelt wird.
13. Verwendung einer Anordnung nach einem der Ansprüche 1 bis 9 und/oder  
eines Verfahrens nach einem der Ansprüche 10 bis 12 zum Herstellen und/oder  
Aufbereiten eines Brennstoffs in einem Fahrzeug für eine Brennstoffzelle zum  
Betreiben des Fahrzeugs.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/DE 00/02157

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 B60K6/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 B60K B01J H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 798 798 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 1 October 1997 (1997-10-01) page 16, line 57 -page 17, line 4; claim 1; figure 8	1,2,10, 11
A	DE 197 16 470 C (MOTOREN TURBINEN UNION) 1 October 1998 (1998-10-01) the whole document	1,10
A	WO 97 44123 A (INT FUEL CELLS CORP) 27 November 1997 (1997-11-27) claim 1	1,10

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

15 November 2000

Date of mailing of the international search report

22/11/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Tamme, H-M

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 00/02157

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0798798 A	01-10-1997	JP 9315801 A CA 2198333 A	09-12-1997 27-09-1997
DE 19716470 C	01-10-1998	NONE	
WO 9744123 A	27-11-1997	EP 0925107 A	30-06-1999

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/02157

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 B60K6/00

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 B60K B01J H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 798 798 A (TOYOTA MOTOR CO LTD) 1. Oktober 1997 (1997-10-01) Seite 16, Zeile 57 -Seite 17, Zeile 4; Anspruch 1; Abbildung 8	1,2,10, 11
A	DE 197 16 470 C (MOTOREN TURBINEN UNION) 1. Oktober 1998 (1998-10-01) das ganze Dokument	1,10
A	WO 97 44123 A (INT FUEL CELLS CORP) 27. November 1997 (1997-11-27) Anspruch 1	1,10

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

15. November 2000

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

22/11/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Tamme, H-M

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/02157

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0798798 A	01-10-1997	JP 9315801 A CA 2198333 A	09-12-1997 27-09-1997
DE 19716470 C	01-10-1998	KEINE	
WO 9744123 A	27-11-1997	EP 0925107 A	30-06-1999